N° d'ordre : I. D. 24

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE CLERMONT

POUR OBTENIR

LE TITRE D'INGÉNIEUR-DOCTEUR

PAR

Robert ROULLET

Ingénieur E.N.S.C.C., Licencié es-Sciences
Diplômé d'Etudes Supérieures

PREMIÈRE THÈSE :

ÉTUDE DE LA DISTRIBUTION DES DIFFÉRENTS ÉLÉMENTS D'UN PAPIER A L'AIDE DE TRACEURS RADIOACTIFS

DEUXIÈME THÈSE :

LES CHAMBRES A BULLES A LIQUIDES LOURDS

Soutenues le 4 mai 1963
devant la Commission d'Examen

Président : M. le Doyen E. DUBOIS

Examinateurs :
M. R. RAMBAUD
Mme M. AVAN
M. L. AVAN
M. G. COURTOIS

G. DE BUSSAC, CLERMONT-FD

N° d'ordre : I. D. 24

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE CLERMONT

POUR OBTENIR

LE TITRE D'INGÉNIEUR-DOCTEUR

PAR

Robert ROULLET

Ingénieur E.N.S.C.C., Licencié es-Sciences
Diplômé d'Etudes Supérieures

PREMIÈRE THÈSE :

ÉTUDE DE LA DISTRIBUTION DES DIFFÉRENTS ÉLÉMENTS D'UN PAPIER A L'AIDE DE TRACEURS RADIOACTIFS

DEUXIÈME THÈSE :

LES CHAMBRES A BULLES A LIQUIDES LOURDS

Soutenues le 4 mai 1963
devant la Commission d'Examen

Président : M. le Doyen E. DUBOIS

Examinateurs :
M. R. RAMBAUD
Mme M. AVAN
M. L. AVAN
M. G. COURTOIS

S. DE BUSSAC, CLERMONT-FD

UNIVERSITEITSBIBLIOTHEEK - LEIDEN -

ANNEE SCOLAIRE 1962-1963

Doyen	:	P. REMY
Assesseur	:	E. DUBOIS
Assesseur	:	M. ROQUES

PROFESSEURS

M. DUBOIS Emmanuel	Physique
M. HOVASSE Raymond	Zoologie
M. RAMBAUD René	Chimie
M. REMY Paul	Chimie
M. BLANC Eugène	Mécanique Rationnelle
M. ROQUES Maurice	Géologie - Minéralogie
M. LAPADU-HARGUES Pierre	Géologie - Minéralogie
M. TRUFFAULT Robert	Chimie
M. LUTZ Hubert	Biologie animale - Zoologie
M. RAOULT Gaston	Physique
M. CHAMPAGNAT Paul	Physiologie Végétale - Botanique
M. DUPLESSIS-KERGOMARD Alain	Chimie
M. KRASNER Marc	Algèbre Supérieure
M. AVAN Louis	Physique Expérimentale
Mme HENNEQUIN Françoise	Mathématiques
Mle BERTHET Ginette	Physique
M. LOISEAU Jean	Botanique

PROFESSEUR ASSOCIE

M. BALANZAT Manuel	Mathématiques

PROFESSEURS SANS CHAIRE

Mme AVAN Madeleine	Physique
M. de PUYTORAC Pierre	Biologie - Zoologie
M. COMBE René	Physique
M. BAILLAUD	Botanique
M. PETERLONGO Jean-Marc	Géologie
M. DELOST	Physiologie Animale
Mle DONDON	Chimie - Physique
M. SAUREL	Physique
M. VESSIERE	Chimie
M. GUILLAUME	MAthématiques
M. BATHIER Marcel	Physique
M. MAISONNEUVE Jacques	Géologie
M. PHAM Tan Hoang	Mathématiques
M. CAPESTAN Michel	Chimie
M. HENNEQUIN Paul	Mathématiques
M. THOMAS Jean	Physique
M. ROCHE Jean-Etienne	Physique
M. BEN-AIM	Chimie
M. CHADEYRAS Marcel	Mathématiques
M. FAIGAS Maurice	Mathématiques

A M A F A M I L L E

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41546608_0014

à M. et Mme A V A N

Directeurs du Laboratoire
de PHYSIQUE NUCLEAIRE
de CLERMONT-FERRAND

R E S U M E

Cette thèse, commencée au Laboratoire de Physique Nucléaire de la Faculté des Sciences de CLERMONT-FERRAND, a été réalisée aux Centres d'Etudes Nucléaires de SACLAY et de GRENOBLE. La partie expérimentale eut lieu à l'Usine des Papeteries ARJOMARI de CHARAVINES (Isère).

Dans une première partie théorique nous étudions la fabrication de radioéléments, la mise en oeuvre des traceurs radioactifs et l'analyse de rayonnement béta et gamma.

La deuxième partie expérimentale nous montre le choix des traceurs et la réalisation des différentes expériences qui mettent en jeu ces traceurs.

AVANT - PROPOS

La réalisation de cette thèse n'a été possible que grâce à l'aide et à la collaboration de nombreuses personnes. Qu'ils en soient ici remerciés.

Je remercie, tout d'abord

Monsieur le Doyen DUBOIS
Professeur à la Faculté des Sciences, qui a bien voulu présider le Jury et m'a permis de travailler dans les Laboratoires de la Faculté des Sciences.

Monsieur R A M B A U D
Professeur à la Faculté des Sciences, Directeur de l'E.N.S.C.C., qui le premier, m'a encouragé à la recherche et m'a toujours donné des conseils éclairés.

Monsieur A V A N,
Professeur à la Faculté des Sciences, qui m'a formé aux Sciences Nucléaires et a su me diriger avec compétence.

Madame A V A N
Professeur à la Faculté des Sciences, qui m'a offert mon deuxième sujet, après m'avoir donné un enseignement magistral pendant près de quatre ans.

Monsieur C O U R T O I S
Ingénieur au CENTRE d'ETUDES NUCLEAIRES de SACLAY, qui m'a pris comme stagiaire dans son service et durant plus d'un an s'est dépensé sans compter pour moi. Il a été beaucoup plus qu'un patron et je garde un souvenir inoubliable du temps passé à SACLAY. Son aide fut déterminante dans la réalisation de ce travail.

Monsieur M A R T I N
Directeur Technique des papeteries BOLLORE, qui m'a fait faire mes premiers pas dans l'industrie et m'a offert une étude intéressante.

Monsieur SIMONNET,
Directeur de l'Usine "LA TOUR CLERMONT" des papeteries ARJOMARI, qui m'a donné les moyens de mener à bien cette étude et m'a toujours reçu avec bienveillance.

Je dois de nombreux remerciements à tout le personnel du SERVICE d'APPLICATION des RADIOELEMENTS de SACLAY. Pendant un an, ils m'ont offert leur aide incessante et m'ont fait partager les réalisations les plus intéressantes du Laboratoire.

La partie expérimentale ne put se réaliser que grâce aux groupes d'IRRADIATIONS des GRANDES PILES de SACLAY et GRENOBLE, et à l'aide de la S.A.R. du Centre de GRENOBLE.

Monsieur POUCHKINE
des Papeteries ARJOMARI m'apporta une collaboration de premier ordre lors des essais sur machine.

Le personnel du Laboratoire de Physique Corpusculaire de HAUTES ENERGIES (L.P.C.H.E.) de SACLAY m'a permis de réaliser dans d'excellentes conditions mon deuxième sujet.

-=-=-=-

Je remercie les personnes qui m'ont aidé à la réalisation pratique de ces mémoires.

-=-=-=-

Que tous reçoivent le témoignage de ma profonde reconnaissance.

o ° o

TABLE DES MATIERES

1° P A R T I E = T H E O R I E

		Page
I -	INTRODUCTION	1
II -	GENERALITES	
	A - Fabrication du papier	2
	B - Méthode et mise en oeuvre des traceurs	5
III -	PRODUCTION DE RADIOELEMENTS ARTIFICIELS	
	A - Théorie de l'activation	9
	B - Caractéristiques des différentes sources de neutrons	15
IV -	ANALYSE du RAYONNEMENT	
	A - Analyse : Spectrographie	22
	B - Analyse par activation	32
	C - Analyse :	
	1°) Mesure de période	39
	2°) Courbes d'absorption	42
	3°) Mesure au scintillateur	52
	D - Autoradiographie.	59
	1°) Différents films	
	2°) Analyse des résultats	74

-=-

2° P A R T I E = E X P E R I E N C E S

		Page
I -	BETAGRAPHIE	75
II -	ACTIVATION DES DIFFERENTS ADJUVANTS	79
	- Effet SZILARD	86
	- Décomposition	
III -	ACTIVATION DU PAPIER FINI	92
	Auto-absorption beta	95
IV -	EXPERIENCES REALISEES EN USINE	
	A - Choix des traceurs	
	1°) Période	98
	2°) Nature du rayonnement	100
	3°) Sécurité	104
	B - Réalisation	110
V -	ANALYSE DES RESULTATS	120

-=-=-=-

I - INTRODUCTION

L'Industrie papetière produit de nombreuses qualités de papiers. Suivant la destination du produit fini, le contrôle des caractéristiques mécaniques et de l'homogénéité est plus ou moins sévère ; il existe une sorte de papier pour lequel les normes sont particulièrement rigoureuses : il s'agit du support de papier photographique. En effet celui-ci devra supporter un barytage avant le coulage de l'émulsion ; au cours du développement il trempera dans différents bains chimiques avant de subir un chauffage important lors du glaçage de l'épreuve.

Nous n'entrerons pas dans le domaine des caractéristiques mécaniques ; nous nous contenterons d'étudier la répartition des différents adjuvants ajoutés à la pâte à papier et l'homogénéité en "fin de machine". La méthode, une fois mise au point, le papetier fera varier les différents paramètres de fabrication pour l'obtention des résultats qu'il juge intéressants et pour l'étude de l'incidence de l'homogénéité sur l'apparition de défauts en cours de développement d'un cliché. Le problème est donc de mettre au service d'une industrie une méthode fine d'analyse et de localisation. Cette méthode devrait pouvoir être employée en laboratoire de recherche et si possible en usine ; il convient donc de noter que des critères comme la simplicité de mise en oeuvre, la rapidité et le prix de revient doivent être étudiés avec soin.

Dans une première partie, nous schématisons la fabrication du papier qui nous intéresse ; une fois le problème posé, nous décrivons la production et la mise en oeuvre des traceurs radioactifs.

-=-=-

II - GENERALITES

A) LA FABRICATION DU PAPIER

Résumons les différentes étapes de fabrication du support de papier photographique. Pour toutes les expériences effectuées en Usine nous avons utilisé une machine de Laboratoire "Kaemmerer" de 200 mm de large pouvant travailler avec 1 ou 2 kilogrammes de pâte.

Cette petite machine reproduit le plus fidèlement possible la fabrication effectuée par les machines industrielles. Elle nous permet de travailler avec des quantités réduites de matière et offre une très grande maniabilité. Nous étudierons le mélange des adjuvants et de la pâte à papier ainsi que le passage sur machine après avoir sommairement rappelé les opérations précédant ce mélange.

Composition de la pâte à papier

Elle est, suivant sa qualité, à base de pâte de chiffon (20 à 40%) de pâte au bisulfite blanchie (10 à 70%) avec parfois, addition d'un peu de pâte de paille (10%).

Raffinage

Il faut procéder à un raffinage moyen ; ce traitement mécanique permet d'obtenir une homogénéisation parfaite, de séparer les fibres élémentaires tout en leur conservant leur plus grande longueur et d'amener les matières fibreuses à un état favorable à l'enchevêtrement ou feutrage pour l'obtention de la feuille.

L'appareil employé, appelé "Pile Hollandaise" se compose d'un bassin de forme ovale avec une cloison médiane formant un canal dans lequel la pâte peut se déplacer de façon continue. Un cylindre muni de lames non tranchantes, tourne à l'intérieur à grande vitesse et peut être plus ou moins rapproché d'une platine placée au dessous et munie également de lames. Le temps de séjour dans la pile raffineuse et l'espacement "cylindre - platine" permettent de régler "l'engraissement" de la pâte. La pile utilisée était un appareil de Laboratoire et raffinait 1 kilogramme de pâte

par opération. La pâte versée dans un cuvier, nous procédons à l'encollage.

Encollage

La colle est constituée de :

- colophane
- cire (paraffine)
- caséine
- carbonate de Sodium

Solution à laquelle on ajoute de la mélamine-formol ; une fois la colle versée dans le cuvier et agitée énergiquement, nous la faisons floculer sur les fibres par adjonction de chlorure d'Aluminium. On ajoute quelquefois de la fécule, et les fibres encollées, très dispersées dans l'eau, sont envoyées en tête de machine. La colle représente environ 24% de la matière sèche totale et dans le cuvier la dilution est de 2 Kilogrammes de pâte pour 150 litres d'eau.

MACHINE (cf. figure dernière page)

La machine comprend une caisse d'arrivée à niveau constant et un distributeur de pâte qui envoie de façon continue et régulière la suspension de fibres sur une toile métallique sans fin. Cette toile, qui est l'élément essentiel de toute machine à papier, constitue la table. De nombreux petits rouleaux, appelés "pontuseaux", sont placés sous la table afin de lui donner de la rigidité et de permettre un premier égouttage par capillarité.

Une règle de laiton, placée en travers de la toile et en tête, permet de répartir uniformément la suspension de fibres sur la toile en épaisseur plus ou moins grande suivant sa position, on peut ainsi agir sur l'épaisseur du papier. Les fibres entraînées par la toile sont soumises à des vibrations transversales pour augmenter l'enchevêtrement.

Avant de quitter la toile, le tapis de fibres passe sur trois caisses aspirantes et un tambour lui aussi aspirant.

La majeure partie de l'eau á été ainsi éliminée mais, riche en colle, elle est récyclée par une pompe, seuls le trop plein et l'eau provenant des

caisses et tambour aspirants, sont envoyés à l'égoût. Nous verrons au cours des expériences toute l'importance de ces détails au chapitre du rejet des effluents radioactifs.

PRESSES COUCHEUSES

La feuille, encore très humide, passe sur un feutre coucheur sans fin, sur lequel elle est appuyée par des cylindres. Le feutre enlève l'eau à la façon d'un simple buvard.

La machine de Laboratoire possédait deux presses coucheuses en série et, pour éviter d'avoir un envers dans le papier, on retourne le mouvement dans une "presse montante" qui appuie sur le feutre la face ayant touché précédemment le cylindre.

SECHERIE

La feuille qui est devenue assez résistante, mais qui contient encore 50 ou 60% d'eau, est dirigée vers deux ensembles de cylindres sécheurs, chauffés électriquement (ou en Usine par vapeur basse pression) Des feutres appliquent le papier contre ces tambours sécheurs et entre les deux sècheries se trouve une presse qui calandre.

A la sortie des tambours sécheurs, le papier n'a plus que 6 à 8% d'humidité. Il passe alors dans les presses encolleuses.

PRESSES ENCOLLEUSES

Celles-ci au nombre de deux servent au traitement de surface du papier. La première presse peut contenir une solution de gélatine à 10% et l'autre une solution tannante d'Alun de Chrome. Une troisième sècherie élimine l'humidité prise dans les presses encolleuses ; après passage sur un cylindre refroidisseur on calandre le papier. Cette opération, qui consiste à faire passer le papier entre plusieurs cylindres fortement pressés les uns sur les autres, donne au papier une surface plus lisse. A la sortie de la calan- la feuille est enroulée sur un tambour.

CARACTERISTIQUES DU PAPIER

Caractéristiques Physiques : solidité, imperméabilité, bonne siccité, satinage soigné avec surface très finie et unie.

Caractéristiques Chimiques : bon degré de blancheur, absence de fer, de cuivre et de produits photochimiquement actifs :

Poids : 55 à 250 grammes au mètre carré.

Les papetiers étaient intéressés par la distribution des différentes colles et adjuvants dans le papier fini. Il fallait trouver une méthode qui permette de localiser chacune des colles et de vérifier de la façon la plus précise l'homogénéité. La méthode des traceurs radioactifs semblait toute indiquée.

B) METHODE ET MISE EN OEUVRE DES TRACEURS

On appelle traceur ou indicateur, une substance permettant de suivre le mouvement, le comportement ou la concentration d'un groupe bien déterminé.

Le traceur peut être un atome radioactif ou un autre moyen d'identification tel qu'un produit coloré. Seuls les premiers seront étudiés.

1°) Différentes catégories de traceurs radioactifs :

a) Un atome de la molécule donne lieu à décomposition radioactive. La molécule est donc marquée en elle-même d'où le nom de;

"traceur intrinsèque" ou "traceur du 1er ordre"

b) On mélange au corps à tracer un atome radioactif qui suivra le plus fidèlement possible la substance à étudier.

Cette méthode utilise un "hétéro-traceur" ou "traceur du deuxième ordre".

c) Les méthodes précédentes nécessitent l'utilisation de produits radioactifs sur les lieux de fabrication ; ce qui peut nuire à la sécurité du personnel et peut amener une contamination du matériel notamment quand il s'agit de papiers photographiques. Pour ces raisons, la méthode du "traceur à postériori" est intéressante.
On procède à la fabrication ou à la synthèse que l'on désire étudier, puis on irradie le produit fini dans un réacteur nucléaire ; on peut ainsi provoquer la naissance de radiosotopes susceptibles de donner des radiotraceurs. Ce radiotraceur peut être présent dans la substance ou additionné volontairement au préalable.

d) Nous ne ferons que citer les "traceurs inverses" car leur application n'était pas possible dans notre problème. Il s'agit de faire attaquer un corps radioactif par la substance à étudier et de doser le gaz actif qui se dégage. Cette méthode, utilisée dans les clathrates permet le dosage de l'ozone dans la stratosphère.

2°) VALIDITE DES TRACEURS

Il est essentiel de vérifier que le traceur suit fidèlement la substance marquée. Dans le cas du traceur intrinsèque nous obtiendrons une grande fidélité à condition que la molécule marquée soit très peu différente de la molécule initiale, c'est à dire, que la différence de masse soit faible. Cet "effet isotopique" est en général négligeable sauf dans le cas de faible poids atomique.

Lors de l'évaporation, l'effet isotopique sera de : eau tritiée/eau normale,

$$(HTO/H_2O) = 20/18 \simeq 1,1$$

pour l'eau marquée au tritium.

Dans le cas de carbonate, marqué au Sodium 24, l'effet n'est plus que de :

$$108/106 = 1,02$$

Il faut noter que dans les réactions faisant appel aux atomes ou aux ions, l'effet est plus important :

$$^{3}H / ^{1}H = 2$$

$$^{24}Na / ^{23}Na = 1,04$$

De tels effets interviennent très peu dans les réactions chimiques ou physico-chimiques qui nous intéressent et nous pourrons considérer le Sodium 24 résultant de la capture d'un neutron par du Sodium 23 comme un traceur à peu près parfait, en tout cas, comme le plus fidèle.

Il faut vérifier que les propriétés, mises en jeu dans les réactions à étudier, sont très peu différentes entre le traceur et la substance ; pour certaines réactions ce sera la granulamétrie, pour d'autres la tension de vapeur ou la viscosité. Dans le cas du traceur du deuxième ordre on devra souvent faire un compromis car on ne peut faire coïncider que une ou deux propriétés.

ROLE DE L'ENTRAINEUR

Dans les applications des radiotraceurs, la quantité active est très faible et, à ces dilutions extrêmes, les phénomènes d'absorption sur les parois et les solides en suspension peuvent devenir très importants. Pour réduire ces phénomènes on additionne au radiotraceur une quantité pondérable du même élément inactif entraineur. Le plus souvent, l'irradiation n'activant qu'une partie infime de l'élément, nous avons un entraineur naturel en la partie inactive.

OBTENTION DES TRACEURS

a) L'irradiation directe constitue le procédé le plus simple :

- le corps devient radioactif et émet des rayonnements caractéristiques de ses constituants : nous avons un traceur intrinsèque.

- le corps reste inerte au point de vue radiotraceurs, mais il comporte des impuretés qui s'activent. Ainsi se trouve formé un traceur du deuxième ordre; l'impureté se trouvant mélangée intimement à la substance, suivra très bien celle-ci. Cette méthode a malheureusement l'inconvénient de nécessiter le passage en réacteur de produits organiques souvent détruits par radiolyse ou effet Szilard ; nous étudierons plus en détail ces effets dans la partie expérimentale mais il existe une méthode donnant le même résultat tout en évitant ces inconvénients

b) On ajoute au corps inerte une substance active analogue aux impuretés du corps, après homogénéisation on se retrouve dans le cas précédent sans l'effet des radiations.

c) Les traceurs à postériori pour des raisons déjà citées sont très pratiques, il faudra cependant vérifier leur fidélité en les comparant, si possible, à des traceurs des deux types précédents.

d) Lorsque l'irradiation directe ne permet pas d'obtenir le radiotraceur désiré, comme par exemple pour : H, C, O et N, on procède à la synthèse à l'aide d'atomes radioactifs obtenus de façon spéciale.

Chacune de ces méthodes sera étudiée plus en détail au moment de la réalisation des expériences Avant cela, il faut décrire le processus de formation des radioéléments artificiels.

-=-=-=-

III - PRODUCTION DE RADIOELEMENTS ARTIFICIELS

A - THEORIE de l'ACTIVATION :

S'il n'est pas question de construire une grande pile uniquement pour produire des radioéléments, on cherche à utiliser au mieux les possibilités offertes par les réacteurs de recherche ou les réacteurs industriels.

Avant d'examiner les caractéristiques de ces réacteurs, étudions les différents facteurs qui agissent sur l'interaction "neutron-matière".

1°) INTERACTION NEUTRON-MATIERE :

Laissons de côté les phénomènes de diffraction neutronique (Diplôme d'Etudes Supérieures, Clermont-Fd 1961), examinons essentiellement la capture des neutrons par les noyaux.

Les neutrons sont caractérisés par une absence globale de charge ce qui leur permet de pénétrer avec facilité dans les noyaux, à l'opposé des particules chargées qui, elles, subissent l'influence des barrières de potentiel coulombien. Un neutron incident s'introduisant dans un noyau-cible va rompre la stabilité de celui-ci ; en un temps de l'ordre de : 10^{-20} secondes, le noyau composé va se transformer en un nouveau noyau presque toujours radioactif.

Il y a divers types de réactions nucléaires de capture neutronique principalement :

$$(n, \gamma)$$
$$(n, p)$$
$$(n, \alpha)$$

La première réaction a la particularité de ne pas amener de changement dans la nature chimique de l'élément bombardé puisqu'il n'y a pas de variation du nombre atomique.

Ex : Production de cobalt 60 radioactif à partir du cobalt naturel :

$$^{59}_{27}Co + ^{1}_{0}n \longrightarrow ^{60}_{27}Co + \gamma$$

La deuxième réaction, de même que la troisième, amène une variation du nombre atomique et conduit donc à un nuclide différent de l'élément cible.

Ex : Production du Carbone 14 à partir de l'Azote

$$^{14}_{7}N + ^{1}_{0}n \longrightarrow ^{14}_{6}C + ^{1}_{1}P$$

Le troisième type peut être illustré par le processus de fabrication du Tritium

$$^{6}_{3}Li + ^{1}_{0}n \longrightarrow ^{3}_{1}H + ^{4}_{2}\alpha$$

Il convient de mentionner un autre type de réaction très important puisqu'il se produit toujours à l'intérieur d'une pile : il s'agit de la fission par les neutrons, c'est-à-dire la rupture d'un noyau lourd (le plus souvent de l'Uranium 235) en deux éléments de masse voisine comme par exemple le Cesium 137 et le Srontium 90.

Ces divers corps ont une certaine activité; calculons-la en fonction des différents éléments propres à la pile : flux neutronique, éléments dépendant de l'expérimentateur comme le temps d'irradiation, éléments propres au corps à irradier comme sa période.

Si l'on soumet n noyaux à un flux Φ de neutrons nous aurons N noyaux transmutés tels que :

$$\frac{dN}{dt} = \sigma \Phi \quad n \qquad (1)$$

où σ est la section efficace du corps considéré et précise la probabilité de capture entre un noyau et un neutron incident. σ peut être représentée par la portion de surface du noyau entrant réellement en action avec le neutron ; elle a donc les dimensions d'une surface et, comme nous sommes à l'échelle atomique, l'unité de section efficace est très petite : c'est le barn qui vaut 10^{-24} cm^2

Si un certain nombre de noyaux radioactifs se forment, il s'en détruit λN par désintégration radioactive :

$$\frac{dN}{dt} = - \lambda N \qquad (2)$$

Tout se passe donc comme si la vitesse de formation de l'élément était la somme des vitesses précédentes :

$$\frac{dN}{dt} = \sigma \Phi n - \lambda N \qquad (3)$$

et si T est la période nous avons : $\lambda = \frac{0,693}{T}$

d'où l'on tire l'activité A :

$$A = \sigma \Phi n \left(1 - e^{- 0,693 \frac{t}{T}} \right) \qquad (4)$$

en reportant l'activité à 1 gramme de corps irradié

on a :

$$n = \frac{1}{M} \times N = \frac{1}{M} \times 6,02 \times 10^{23}$$

et si σ est exprimé directement en barn et Φ en neutron par centimètre carré par seconde il faut multiplier par 10^{24}.

Souvent l'activité est calculée directement en Curie, en se rappelant que 1 Curie équivaut à $3,7.10^{10}$ désintégrations par seconde, nous avons l'activité spécifique A en Curie par gramme.

$$A = \frac{0,6}{3,7.10^{10}} \times \frac{\Phi \sigma}{M} \left(1 - e^{- 0,693 \frac{t}{T}} \right) \qquad (5)$$

A : activité spécifique en Curie par gramme

Φ : flux en neutron/cm^2 x s

σ : section efficace en barn

t : temps d'irradiation en même unité que la période T.

Si le Radioélément n'est utilisé qu'au bout du temps t' après défournement de la pile il nous restera :

$$A = \frac{0,6}{3,7.10^{10}} \times \frac{\Phi \sigma}{N} (1 - e^{- 0,693 \frac{t}{T}}) e^{-0,693 \frac{t'}{T}} \qquad (6)$$

Nous nous trouvons en présence des différents paramètres qui influent sur l'activité.

Etudions plus spécialement ceux sur lesquels l'expérimentateur peut directement ou indirectement agir.

- La Section efficace.

Nous nous contenterons de résumer les différentes caractéristiques.

La probabilité d'intéraction neutron-noyau variant avec l'énergie des neutrons σ variera,elle avec cette énergie par exemple pour l'or :

^{193} Au

σ = 30 barn pour les neutrons de 1 e.v

σ = 100 - d° - de 0,025 e.v (neutrons thermiques)

On peut dire qu'en dessous de 1 M.e.v, au fur et à mesure que l'énergie du neutron diminue la section efficace totale augmente suivant le rapport $\frac{1}{V}$ où V est la vitesse du neutron (donnée expérimentale établie initialement par E.FERMI)

$$V \text{ en m/s} = 1,383 \ 10^4 \sqrt{E} \quad (E \text{ en e.V})$$

Au dessous de 10 k.e.V la plupart des isotopes présentent un seuil énergétique pour lequel la

section efficace augmente considérablement (absorption et diffusion de résonance). En effet pour cette vitesse particulière du neutron, l'énergie d'excitation du noyau composé (noyau + neutron) est égale à l'énergie d'un des niveaux quantites permis et la probabilité est alors très élevée. Dans cette bande d'énergie peut être calculé par la formule dite de "BREIT-WIGNER".

Pour une réaction (n,γ) dans la région de résonance

$$\sigma\ (n,\gamma) = \frac{\lambda o.\lambda}{4\pi}\ \frac{\Gamma a \quad \Gamma b}{(E - Eo)^2 + \frac{\Gamma^2}{4}}\quad g$$

λo = λ du neutron à la valeur exacte de la résonance

λ = λ du neutron incident ($\lambda = h/mv$)

Eo = énergie du neutron à la valeur de résonance (en e.v)

E = énergie du neutron incident

$g = \frac{(2J + 1)}{2}$ (2 J + 1) = facteur de poids statistique de la réaction

I = spin du noyau initial

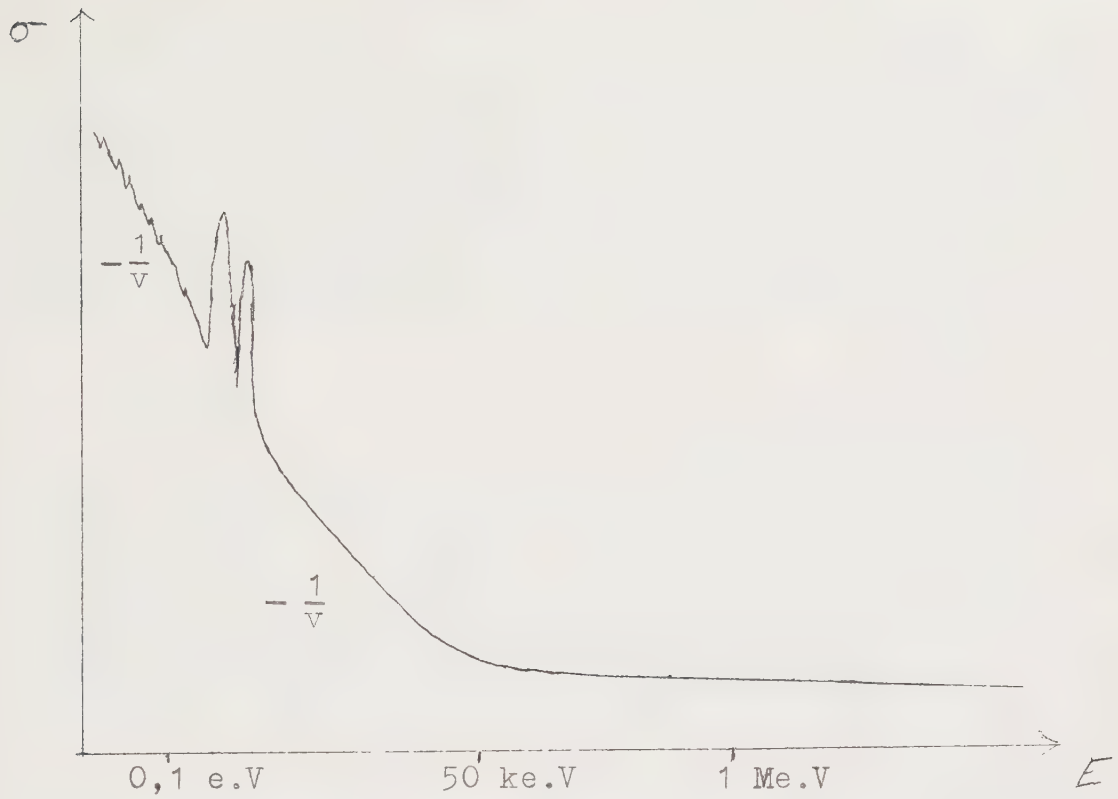
J = d° composé

Γa = largeur partielle ou probabilité relative pour la diffusion du neutron à Eo

Γb = largeur partielle ou probabilité relative pour la capture du neutron à Eo

$\Gamma = \Gamma a + \Gamma b$ = largeur de la résonance à la moitié de sa valeur maximum.

$\sigma(n,\gamma) = \frac{2,6 . 10^6}{Eo}\ g\ \frac{\Gamma a\ \Gamma b}{2}$ à la résonance (en barn)



n.thermiques n.épithermiques n.intermédiaires

Dans un même réacteur, nous avons une gamme assez étendue de vitesse de neutrons. Suivant l'emplacement de l'échantillon nous pourrons favoriser grossièrement certaines réactions. Par exemple dans la colonne thermique, il n'y aura que des réactions n, γ tandis qu'au centre du réacteur où il se trouve un mélange de neutrons thermiques et rapides s'effectueront des réactions :

(n, γ), (n,P), (n, α), (n, 2n)

- Temps d'irradiation

Le temps d'irradiation est fixé par la période du corps à irradier que l'on désire doser ou marquer.

Nous voyons dans la formule (6) que l'activité croit comme $(1- e^{-k \frac{t}{T}})$. Au bout d'un temps égal à sept périodes nous aurons atteint à 1 % près la valeur maximale appelée "Saturation" correspondant à l'activation de tous les atomes du corps.

Une règle pratique est d'irradier à haut flux pendant un temps très court pour favoriser les vies courtes en même temps que l'on procède à une étude, aussitôt le défournement effectué, et d'irradier à bas flux pendant un temps plus long pour obtenir les vies longues en laissant, si possible, s'écouler un certain laps de temps entre le défournement et l'analyse.

LE FLUX -

Les nouveaux réacteurs donnent des flux de plus en plus élevés ce qui permet d'irradier pendant des temps plus courts. Avant de donner les caractéristiques des différents réacteurs, il convient de signaler que le flux ne peut être déterminé qu'à 20 ou même 30 % près du fait des fluctuations de puissance et surtout de l'influence des échantillons à irradier les uns sur les autres.

B - CARACTERISTIQUES DES DIFFERENTES SOURCES DE NEUTRONS

Pour la production de radioéléments, la source principale de neutrons thermiques est le réacteur nucléaire ; dans notre étude effectuée à SACLAY et GRENOBLE, il fut le seul appareil d'irradiation utilisé. Il ne faudrait pas, cependant, négliger les autres sources qui sont actuellement en pleine évolution et complètent le réacteur sans le concurencer. Commençons par l'étude de telles sources.

1°) SOURCE α - n

CHADIVICK découvrit le neutron en 1932 par la réaction :

$$^{9}Be + \alpha \longrightarrow {}^{12}C + n$$

Les sources de ce type, couramment utilisées, sont:

Ra - Be et Po - Be

= Ra - Be

Il s'agit d'une petite capsule contenant un mélange de sulphate ou de bromure de Ra et de poudre de Be.

On obtient des neutrons d'énergie moyenne 5 M.e.V avec des énergies maximales de l'ordre de 13 M.e.V ; cet étalement provient du ralentissement des alpha dans la source et de l'existence d'états excités du ^{12}C résiduel. Le rendement dépend de la préparation de la source, il est de l'ordre de 10^4 n/s par mC de Radium. Pour éviter le rayonnement gamma trop fort du Radium, on utilise un autre émetteur alpha : le Polonium.

= Po - Be

L'énergie moyenne des neutrons est de 4 M.e.v.

Le rendement de 2.10^3 n/s par mC de Polonium, les sources α - n sont utilisées actuellement comme source témoin pour étalonner les compteurs et comparer les flux. On a ainsi mis au point le mélange Ra Be F_4 qui donne un rendement proportionnel au poids de Radium égal à $1,84 \ 10^6$ n/s par g de Radium.

2°) SOURCES (γ , n)

Quand l'énergie d'un gamma est supérieure à l'énergie de liaison du neutron au noyau il y a émission du neutron. Les corps possédant les énergies de liaison les plus faibles sont le Beryllium (1,63 M.e.V) et le Deuterium (2,226 M e V)

Si l'émetteur gamma est le Sodium 24 (γ_1 = 1,37 M e v γ_2 = 2,75 M.e.V) on obtient :

avec Be des neutrons de 1 M.e.v

avec D des neutrons de 0,26 M.e.V

Les différents émetteurs gamma utilisés sont :

^{24}Na (2,75 M e V), ^{140}La (2,5 M e V)

et ^{124}Sb (1,71 M e V)

La capsule contenant l'émetteur gamma est placée à l'intérieur d'une sphère ou d'un cylindre de Beryllium ou de D_2O. Le flux varie de 100 à 1000 n/s par mC.

On obtient avec les plus récentes réalisations des flux de 10^{10} n thermique/s durant 10 minutes. Le principal avantage de telles sources réside dans la simplicité de mise en oeuvre, et de fabrication ; le caractère transportable de ces appareils permet d'envisager un développement et une vulgarisation de toutes les techniques faisant appel à l'irradiation neutronique.

3°) REACTEURS NUCLEAIRES

Seules les caractéristiques des réacteurs utilisés effectivement dans nos expériences seront étudiées :

= E L 2

EL_2 est une pile à eau lourde et Uranium naturel, sa puissance maximale est de 3000 kw.

Nous disposons de 5 canaux expérimentaux non refroidis, utilisables pour la préparation des Radioéléments.

Les différents flux utilisables sont :

- de 0,3 à 3 10^{12} $n/cm^2.s$ en neutrons thermiques
- de l'ordre de 10^{11} $n/cm^2.s$ en neutrons rapides.

Cette pile n'est pas munie de dispositif de défournement en marche et les irradiations ne peuvent avoir qu'une durée égale à un multiple de 155 heures.

Au sommet de la pile se trouvent les "canaux de chimistes" qui servent aux irradiations de courte durée pour certains corps. Le flux est de 2,4 10^{10} $n/cm^2.s$.

Courant Octobre 1962, une chaine à godets a été installée à EL_2. Elle permet un défournement en marche pour les faibles activités. Le flux est de 2,7 10^{12} $n/cm^2.s$

Un flux de l'ordre de 10^{12} $n/cm^2.s$ est généralement suffisant pour les besoins courants en éléments de période courte ou moyenne. Pour les isotopes à période longue le temps d'irradiation deviendrait prohibitif si l'on ne disposait pas de flux de l'ordre de 10^{13} $n/cm^2.s$ comme celui de EL_3.

= E L 3

EL_3 est un réacteur à eau Lourde et à Uranium légèrement enrichi. Sa puissance maximale est de 18 Mw.

Il dispose de deux réflecteurs, l'un en eau lourde, le deuxième en graphite. Il est équipé de huit canaux verticaux dans l'eau lourde pour la fabrication de radioéléments.

Pour une puissance de 17,5 MW le flux thermique varie de 1 à 2 10^{13} n/cm^2.s. Dans le réflecteur en graphite on dispose sur une première couche de 10 canaux verticaux et sur une deuxième de 12 canaux. Ces 22 canaux sont identiques à ceux plongeant dans l'eau lourde mais le flux moyen y est beaucoup plus faible : 2 10^{12} n/cm^2.s dans la 1ère couche,

5 10^{11} n/cm^2.s dans la 2ème couche.

Il existe un canal plongeant dans un écran de Bismuth pour les irradiations sans rayonnement. gamma.

Un dispositif de défournement en marche équipe cette pile. L'extraction des tubes s'opère à l'aide d'une hotte qui s'adapte de façon étanche sur les canaux. L'entrée et la sortie des tubes se fait à l'aide d'un barillet ; après vingt minutes de refroidissement dans la hotte, ce temps permet une décroissance de l'aluminium de période, T = 2,30 minutes ; on pousse le tube dans un chateau de plomb spécial également à barillet. Le temps d'irradiation peut donc être choisi de façon quelconque ; néanmoins il existe une chaine à godets plus maniable pour les irradiations de quelques jours ; le flux mis en jeu est de 10^{10} à 3 10^{12} n/cm^2.s . Malgré ce système de défournement en marche les opérations sont délicates et longues ; aussi 4 canaux pneumatiques plongeant dans le graphite ont été prévus pour des irradiations de 1 à 30 minutes.

Le flux est de 6,4 10^{12} n/cm^2.s à pleine puissance dans 3 d'entre eux et de 4 10^{12} n/cm^2.s dans le quatrième pris dans les mêmes conditions.

Les flux élevés ont soulevé un certain nombre de problèmes ; l'énergie libérée par les réactions nucléaires ou par l'absorption du rayonnement gamma est très grande ; il a donc fallu prévoir un système de refroidissement des canaux à l'aide de gaz carbonique sous 3 kg/cm^2 ; les tubes dans lesquels sont placés les corps à irradier doivent être étanches, avoir une bonne tenue à la chaleur et à la pression : comme nous le verrons lorsque nous étudierons la radiolyse il se produit souvent des dégagements de gaz au cours de l'irradiation. Les tubes en Aluminium sont rendus étanches par soudure à froid et peuvent tenir une pression de 25 kg/cm^2.

Pour les irradiations de courte durée dans les canaux pneumatiques et canaux de chimiste les produits à irradier sont placés dans des tubes en polythène de façon à éviter l'activité prise par l'Aluminium.

MELUSINE

Lors de la réalisation en usine des différentes expériences nous avons préparé les radioéléments au C.E.N. de GRENOBLE. De même que pour EL_2 et EL_3 nous décrirons sommairement la pile utilisée.

L'étendue du programme de recherche, la diversité des utilisateurs et l'implantation aux abords d'une grande ville, imposant à la fois une grande souplesse d'expérimentation et une sécurité complète, ont conduit tout naturellement à faire de "MELUSINE" une pile piscine.

La piscine comporte trois compartiments dont l'un des extrêmes peut être isolé à l'aide d'un batardeau.

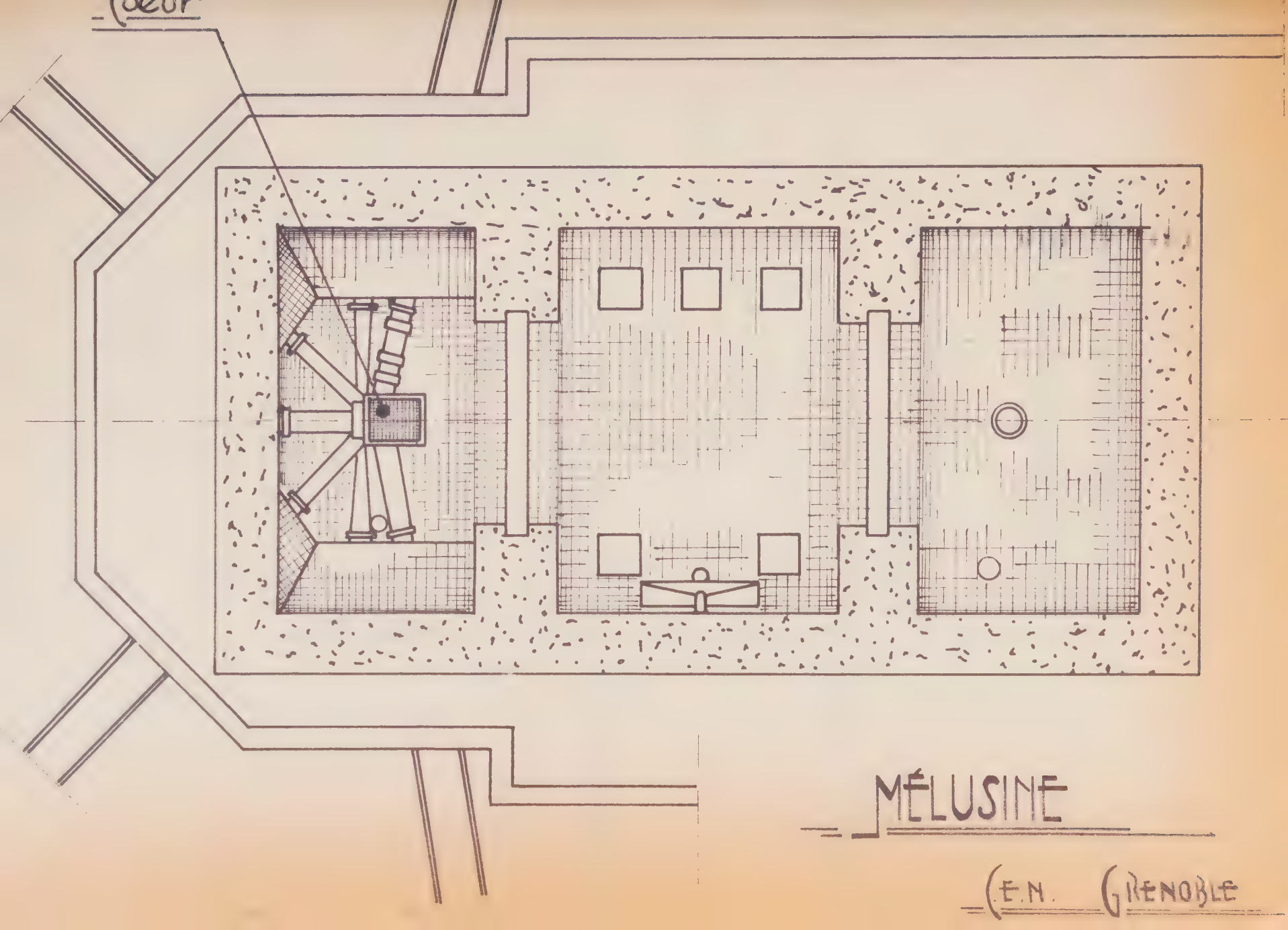
Dans le premier compartiment, où se trouve généralement le coeur, pénètrent des canaux qui permettent aux expérimentateurs d'envoyer un corps à irradier au voisinage du coeur. Il convient de noter que l'on préfère de beaucoup irradier en immergeant la cible dans la piscine et en la déposant dans des rateliers placés juste contre le coeur ; cela permet en effet d'irradier des objets de grandes dimensions et évite les opérations de fermeture des canaux.

Si l'on a irradié dans un tube en Aluminium on laisse décroître les périodes courtes en plaçant le tube dans le compartiment du milieu et si l'activité du corps irradié est encore trop forte pour être manipulé à une distance de un ou deux mètres, on va le chercher à l'aide d'un chateau immersible.

Le Service d'Application des Radioéléments du Centre de GRENOBLE dispose d'un canal pneumatique qui relie directement la salle de comptage à la pile, permettant ainsi l'étude de périodes courtes de quelques minutes. Nous avons toujours utilisé ce canal car il évite les opérations d'immersion et simplifie au maximum les démarches administratives nécessaires à une irradiation.

Le coeur de la pile est constitué d'éléments adaptables dans des logements d'une plaque d'Aluminium. Chaque élément est un alliage d'Aluminium et d'Uranium enrichi à 20 %. Une source de neutrons antimoine-Beryllium est logée dans une boite en Aluminium qui occupe un trou de la plaque. L'eau de la piscine est utilisée pour la réfrigération ; jusqu'à 100 kW la convection naturelle suffit mais au dessus il faut établir une convection forcée. A pleine puissance le coeur peut fonctionner à 1 200 kW et délivre de l'ordre de 10^{13} $n/cm^2.s$, dans le canal pneumatique le flux est alors de $4,7 . 10^{12}$.

Par mesure de sécurité le canal pneumatique ne peut pas être utilisé pour des activités dépassant 1 R/h à 5 cm, et il faut alors procéder à une irradiation classique. Le réacteur étant équipé pour le défournement en marche, il est possible d'avoir sans trop d'erreur l'activité choisie.



MÉLUSINE

C.E.N. GRENOBLE

DIFFERENTS FLUX UTILISABLES A LA PREPARATION DE RADIOELEMENTS

E. L. 2

		Flux en $n/cm^2 . s$	
5 canaux	eau lourde	0,3 à 3.10^{12}	neutrons thermiques
		10^{11}	neutrons rapides
24 canaux de chimiste	eau lourde	$2,4 . 10^{10}$	
Chaine à godets		$2,7 . 10^{12}$	

E. L. 3

8 canaux	eau lourde	1,5 à 2.10^{13}	neutrons thermiques
10 canaux 12 canaux	graphite	$2 . 10^{12}$ $5 . 10^{11}$	
1 canal	Bismuth		
Chaine à godets		10^{10} à 3.10^{12}	
3 canaux pneumatiques	Graphite	$6,4 . 10^{12}$	
1 dº	Graphite	$4 . 10^{12}$	

MELUSINE (C.E.N./GRENOBLE)

1 canal pneumatique	eau	$4,7 . 10^{12}$
1 Canal	eau	$2 . 10^{12}$

IV - ANALYSE DE RAYONNEMENT

Le corps irradié émet différents rayonnements ; il était essentiel pour nous de connaître si l'émetteur était le corps lui-même ou une impureté et quel était la nature et l'énergie du rayonnement.

Nous étions particulièrement intéressés par l'analyse des gamma qui permet un dosage qualitatif et quantitatif rapide. L'analyse beta était toute aussi importante puisque, comme nous le verrons dans l'étude de l'autoradiographie, ce sont les beta qui impressionnent les films utilisés.

A - SPECTROGRAPHE A MEMOIRE MAGNETIQUE

L'emploi de la spectrométrie gamma en scintillation en tant que méthode de mesure de radioactivité s'est de plus en plus développée ces dernières années.

Nous avons utilisé une telle méthode lors de l'activation de papiers finis et aussi pour analyser les colles après activation en pile pour connaître l'origine des corps s'activant. Dans la description de l'appareil utilisé nous nous étendrons un peu car cet appareil très perfectionné rend de grands services. Les spectres obtenus, peuvent être utilisés avec des techniques d'analyse graphique pour les analyses rapides et précises d'échantillons inconnus sur le plan qualitatif et quantitatif.

Avant cette description, étudions les critères qui influent sur un tel appareil. Un cristal scintillant émet de la lumière sous l'impact des particules α, β, γ. Les particules directement ionisantes (alpha, proton, beta, meson chargé, etc...) perdent leur énergie en excitant le long de leur trajectoire des molécules du scintillateur, une fraction seulement de cette énergie est réémise sous forme de lumière par un processus de fluorescence et de phosphorescence : il se produit une scintillation dont la décroissance est une fonction exponentielle du temps. Pour détecter les particules peu pénétrantes tels qu'alpha et protons, une faible épaisseur de cristal suffit mais la détection des rayons beta et surtout des gamma exige une épaisseur notable. Le scintillateur doit évidemment être transparent à sa propre radiation de fluorescence.

Pour détecter les gamma qui cèdent leur énergie au scintillateur par l'intermédiaire d'électrons compton, photoélectriques ou de matérialisation, et compte-tenu de l'intérêt qu'il y a en spectrométrie à favoriser le"pic photoélectrique", on a intérêt à utiliser des éléments de numéro atomique élevé.

Les principales caractéristiques doivent être :

- un bon rendement de transformation de l'énergie de la particule en énergie lumineuse dont le spectre d'émission doit correspondre à la courbe de réponse du photomultiplicateur.

- une durée très courte de l'émission lumineuse pour améliorer le temps de résolution.

- le nombre de photons doit être autant que possible proportionnel à l'énergie de la particule incidente

Les scintillateurs organiques sont linéaires pour les particules peu ionisantes.

Nous allons étudier avec plus de soin le cas des gamma car c'est essentiellement cette détection que nous avons utilisée.

On détecte à l'aide du photomultiplicateur les électrons produits dans le scintillateur et, si cette détection est à peu près totale, l'efficacité doit être :

$1 - e^{-l/\bar{l}}$ ou l : épaisseur du scintillateur

$\bar{l}$: libre parcours moyen du gamma

Pour un cristal organique $\bar{l}$ est de l'ordre de 20 cm à 1 M e V et si $l = 5$ cm on obtient une efficacité de 22 %, valeur confirmée par l'expérience.

L'efficacité croît quand $\bar{l}$ diminue, c'est-à-dire quand le nombre atomique du scintillateur augmente ou quand l'énergie du gamma diminue.

Nous avons utilisé un cristal de Na I activé au Thallium.

Caractéristiques de ce cristal :

Spectre d'émission : 4 . 100 Å

- d'absorption : 2930 - 2340

Hauteur d'impulsion pour les beta : 2 fois celui de l'anthracène

Constante de temps : 25.10^{-8} seconde

Réponse aux particules monoénergétiques :

Alpha : à peu près linéaire

béta : linéaire

proton : linéaire

Choix de la taille du détecteur et de sa forme géométrique

Na I (TI) est un des cristaux qui fut le plus étudié.

BERGER et DOGGETT ont calculé l'efficacité de tels détecteurs d'épaisseur et de diamètre variables pour une gamme d'énergie de 0,279 M e V à 4,45 M e V.

STANFORD et RIVERS étendirent ces calculs jusqu'à 10 M.e.V

EFFICACITE DE DETECTION POUR DES PHOTONS EN FONCTION DE L'EPAISSEUR DU CRISTAL

ENERGIE (M e V)	EPAISSEUR (cm)	
	2,5	5
6	0 , 27	0 , 62
12	0 , 30	0 , 66
18	0 , 33	0 , 70

EFFICACITE TOTALE POUR DES GAMMA DE DIVERSES ENERGIES CALCULEE par la METHODE de MONTE-CARLO

RAYON (cm)	LONGUEUR du CRISTAL (cm)	E N E R G I E (M e V)					
		0,279	0,661	1,17	1,33	2,62	4,45
6,25	10	0,999	0,938	0,859	0,833	0,760	0,741
2,2	5	0,957	0,748	0,635	0,599	0,507	0,484
1,9	2,5	0,798	0,497	0,395	0,363	0,292	0,282

Un cristal cylindrique de 3" de diamètre sur 3" de haut (3" = 7, 6 cm) a été pris comme référence standard pour la spectrométrie à scintillation de précision.

Utiliser un cristal de dimensions supérieures amènerait une augmentation importante du prix, une perte du pouvoir de résolution et nécessiterait un photomultiplicateur onéreux. Avec le cristal précédent on arrive à obtenir une résolution de 8 % sur le pic du Cesium 137 sans être obligé de trop sélectionner le photomultiplicateur et les cristaux.

L'appareil utilisé ne comportait qu'un cristal 1,5" x 1", mais il est prévu de l'équiper avec un 3" x 3".

Le cristal est fixé, à l'aide d'huile de silicone qui sert de joint optique, à un photomultiplicateur. Cet appareil va transformer, par effet photoélectrique, la radiation lumineuse en un faisceau électronique. A l'aide de plaques, appelées "dynodes", on multiplie les électrons de façon à obtenir sur la plaque collectrice un courant décelable. La multiplication des électrons s'effectue par simple différence de potentiel continue entre les dynodes.

MONTAGE DU DETECTEUR.-

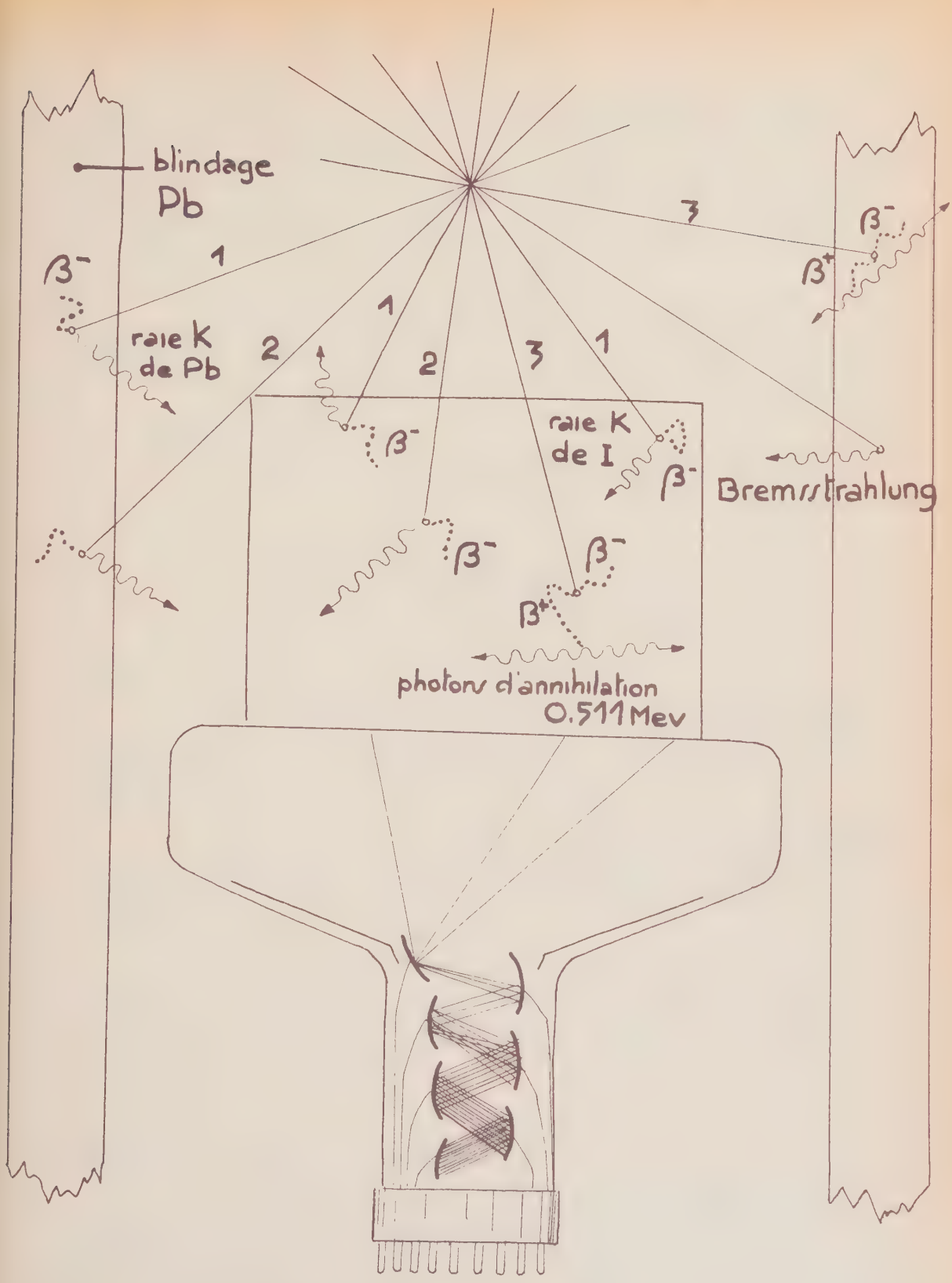
Il convient de réduire au maximum le bruit de fond : d'où l'isolement du détecteur dans une enceinte de plomb, mais il se produit un rayonnement diffusé dont l'origine est l'interaction du rayonnement primaire avec la matière environnante. Ce rayonnement diffusé provient de deux types d'interactions dans le support de source, les absorbants beta ou le blindage :

l'effet photoélectrique

l'effet compton

Le premier effet est spécialement important pour le blindage car la section efficace des photons de faible énergie est grande pour des matériaux [illegible]

INTERACTIONS PRIMAIRES



1 . effet photoelectrique
2 . effet compton
3 . Production de paires

comme le Plomb ; cet effet produit la raie X du matériau absorbant : la meilleure méthode pour éliminer ce rayonnement est d'utiliser un blindage progressif. Une couche de cadmium absorbe le rayonnement important KX du Plomb mais elle émet, à son tour sa raie KX ; il faut avoir recours au Cuivre qui absorbe alors la raie du cadmium.

Nous avons utilisé un chateau de Plomb gainé intérieurement d'une feuille de cadmium de 1 mm suivie d'une feuille de cuivre de 1/10 de mm

- Effet Compton

L'énergie de l'électron diffusé Ee est donnée par :

$$Ee = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{m\,c^2}{(1 - \cos\theta)\,E_\gamma}}$$

où E_γ est l'énergie de photon primaire.

La distribution en énergie du rayonnement observé due à l'effet Compton dans le blindage dépendra en particulier de la géométrie relative de la source, du détecteur et du blindage.

Nous avons utilisé un chateau de 50x50x50cm et la source était montée sur ascenceur ce qui nous permettait de faire varier la distance "source - détecteur".

La raie à 72 k e V due à la raie X du Plomb est à peu près supprimée et il reste surtout un pic assez étroit aux environs de 190 k e v qui peut être considéré comme le pic compton rétrodiffusé caractéristique.

DESCRIPTION DU SPECTROMETRE .-

Au scintillateur muni de son photomultiplicateur et de son préamplificateur s'ajoute un amplificateur linéaire, un sélecteur d'amplitude multicanaux et un stockage d'information à 100 canaux.

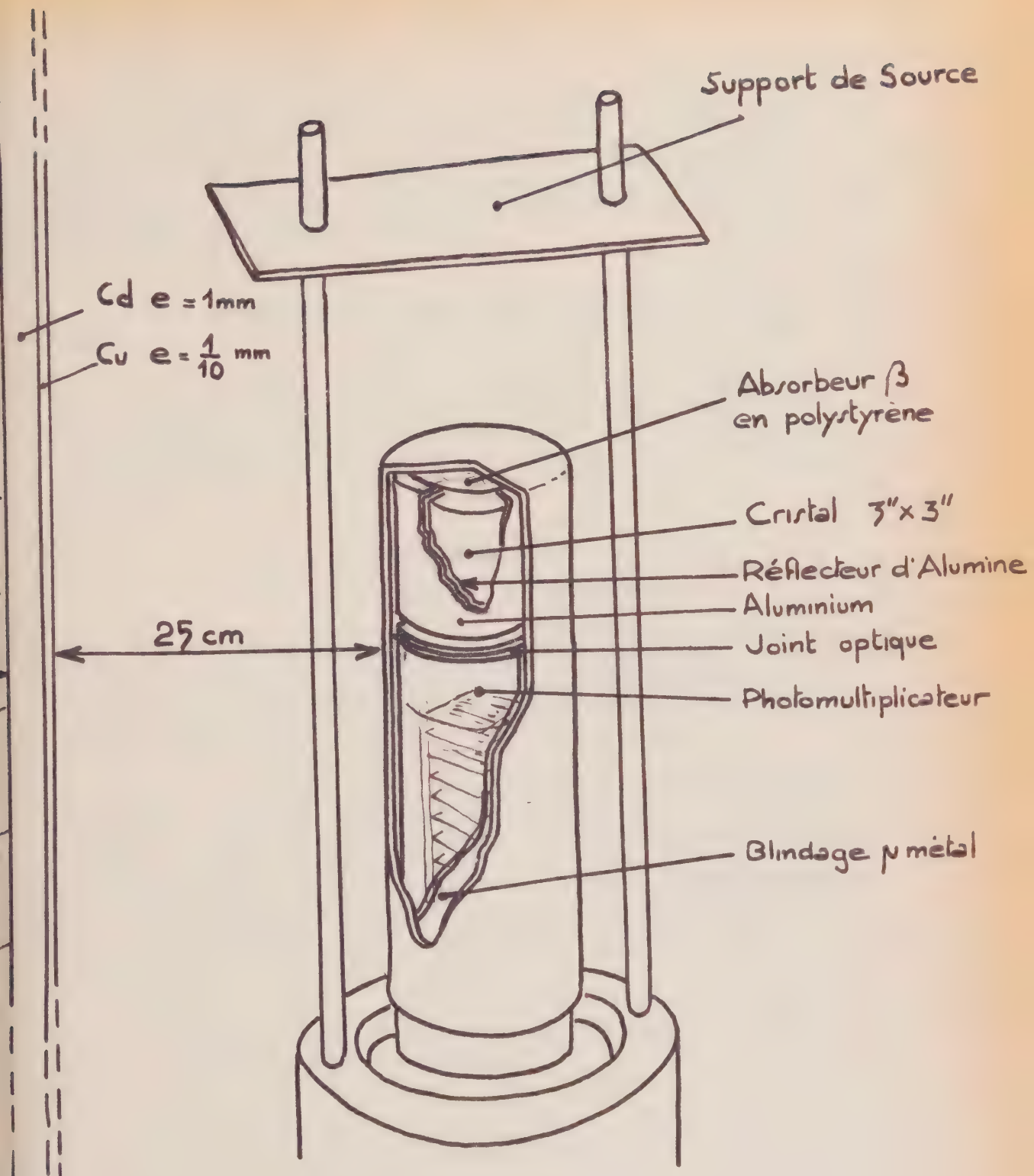


Schéma du détecteur

Cet appareil est très précis et les dérivés à long terme en gain et en seuil ne dépassent pas 1 % par jour. La stabilité de la largeur d'un canal est meilleure que 2 % par jour, un taux de comptage de 20.000 coups par seconde peut être établi sans distorsion notable.

Etudions le cheminement de l'impulsion à partir du détecteur jusqu'à l'ensemble de comptage

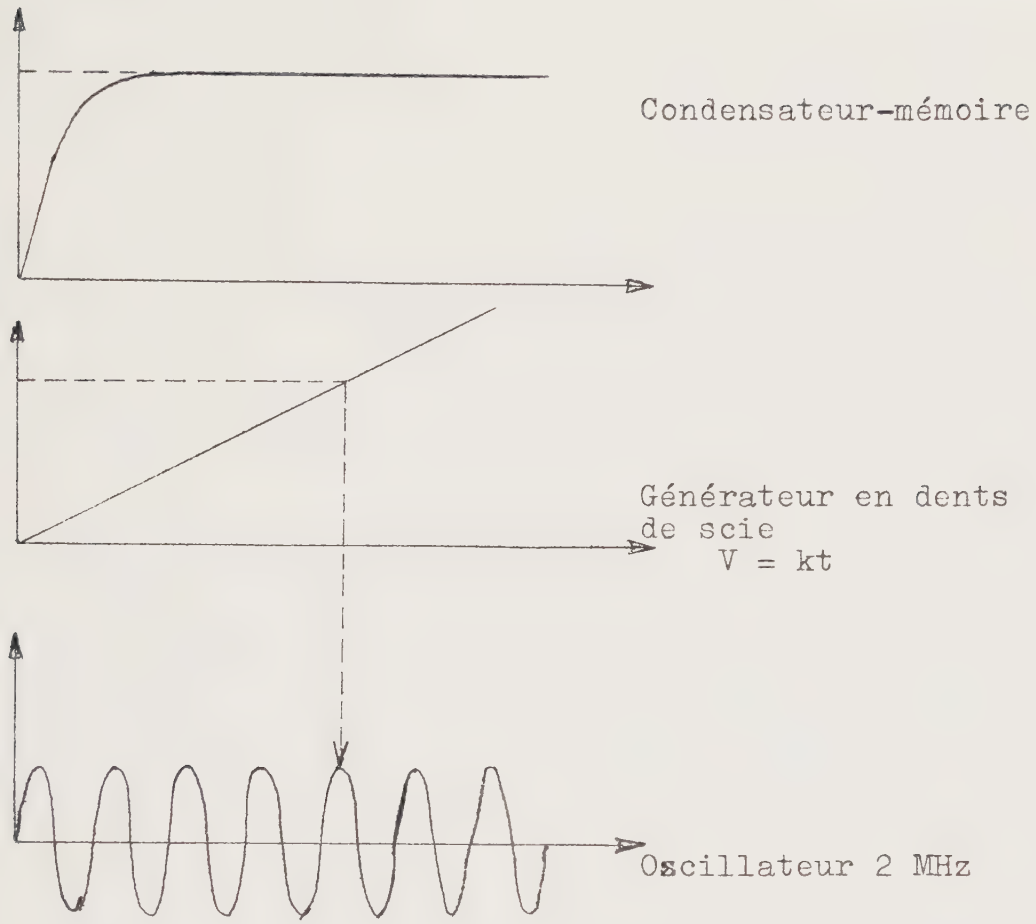
L'impulsion d'amplitude proportionnelle à l'énergie de la particule incidente est dirigée sur le convertisseur analogique qui est un convertisseur amplitude-temps. L'impulsion, issue de la sonde, déclenche simultanément à son entrée dans le convertisseur :

- Un générateur de dents de scie
- Un oscillateur 2 Megahertz.

L'amplitude de cette impulsion incidente est conservée en mémoire dans un condensateur. Lorsque la tension délivrée proportionnellement au temps par le générateur en dent de scie atteint la valeur mémorisée l'oscillateur est bloqué.

La conversion analogique est dès ce moment réalisée car les oscillations produites pendant le temps de fonctionnement de l'oscillateur, dont on ne conserve que la demi-période positive, ont permis de positionner l'échelle d'adresse sur un canal dont le numéro est directement lié à l'amplitude de l'impulsion d'entrée, donc à l'énergie perdue dans le cristal par le photon incident.

Résumons ces différentes opérations en trois schémas :



On voit que le temps mort de l'appareil dépend du rang du canal et qu'il est lié à la fréquence de l'oscillateur attaquant l'échelle d'adresse

La fréquence choisie est de 2 MegaHertz soit un canal tous les 0,5 μs

Le temps mort total sera de $(0,5\ M+30)\ \mu s$ M étant le rang du canal dans lequel l'impulsion est enregistrée, toutes les autres impulsions apparaissant dans cet intervalle seront perdues quelque soit leur amplitude.

Si N est le nombre réel de coups

N' est le nombre enregistré

Si Θ est le temps de résolution et n le taux de comptage, on a :

$$\frac{N'}{N} = 1 - n\Theta$$

pour éliminer ce temps mort variable on utilise un chronomètre d'efficacité qui ne compte que le temps vrai, c'est-à-dire le temps de comptage apparent divisé par le quotient de fonctionnement. Ce quotient représente la fraction du temps de la mesure pendant lequel le sélecteur est réellement sensible (soit 100 %, moins le temps mort).

Les spectres sont représentés en coordonnées semi-logarithmiques ; l'utilisation d'une telle échelle facilite l'analyse graphique puisque la forme du spectre est indépendante de l'amplitude. On trace les courbes en nombre de coups en fonction d'unités arbitraires d'amplitude. La relation entre cette échelle d'amplitude et l'énergie gamma est fonction de l'échelle d'énergie à couvrir. L'appareil S.A.I. 330 utilisé a 5 grammes d'énergies pour les 100 canaux :

G
- = 1 ⟶ 250 k e v
- = 1/2 ⟶ 500 k e v
- = 1/4 ⟶ 1 M e V
- = 1/8 ⟶ 2 M e V
- = 1/16 ⟶ 4 M e v

La linéarite de l'appareil est vérifiée à l'aide de sources-étalons de Sodium 22, Mercure 203 Cobalt 60 et de Cesium 137.

L'utilisation d'une normalisation des courbes permet l'augmentation de la valeur de la publication de telles informations.

ECHELLE DE COMPTAGE -

L'impulsion une fois dirigée vers le canal correspondant est stockée dans un mémoire magnétique à 16 matrices. Chaque matrice est constituée par 100 tores magnétiques en ferrite repartis sous forme de grille à 10 lignes et 10 colonnes.

Pour une matrice donnée chacun des 100 tores correspond à un canal déterminé, chaque canal est défini en position par l'intersection d'une ligne et d'une colonne ; chaque ligne de 16 tores dans la même position pour les 16 matrices constitue un canal.

Pour chaque tore il y a 2 états possibles, la capacité de stockage pour un canal est de 2^{16}, soit 65.536 coupes.

Le spectre apparait au fur et à mesure du stockage sur un oscilloscope. A la fin de la mesure nous pouvons relever directement l'emplacement des pics photoélectriques sur cet appareil car le spectre est constitué de 100 spots lumineux représentant les 100 canaux. Il est souvent préférable de conserver le tracé du spectre, pour cela nous disposons d'un appareil enregistreur qui relève exactement le tracé de l'oscilloscope, mais à une échelle plus grande, ou bien à l'aide d'une machine imprimante nous relevons le nombre de coups dans chaque canal ce qui fera apparaitre les maxima et nous permettra de calculer le nombre de coups totaux dans un pic ; cette dernière mesure servant en analyse quantitative.

Après cette description sommaire de l'activation en pile et de la spectrographie gamma nous arrivons tout naturellement à l'étude de l'analyse par activation.

B - ANALYSE PAR ACTIVATION.-

Pour savoir si nos colles étaient "autotraceuses", c'est-à-dire si elles s'activaient par passage en Pile ou si elles comportaient des impuretés susceptibles de s'activer, il fallait procéder à l'activation puis à l'analyse des spectres. Une telle étude était aussi nécessaire pour l'analyse des papiers finis passés en Pile.

Le principe de la méthode repose sur le fait que chaque élément chimique, placé dans un flux de neutrons, voit un certain nombre de ses atomes transmutés en radiosotopes, l'analyse est élémentaire : les réactions d'activation ne sont sensibles à aucune forme chimique moléculaire de l'échantillon.

L'analyse qualitative repose sur les caractéristiques de rayonnement et de période alors que l'analyse quantitative découle du fait que l'activité induite par irradiation est proportionnelle à la masse de l'élément irradié.

L'analyse par activation n'étant pas pour nous, un but en soi, mais simplement un moyen d'investigation rapide, nous n'étudierons pas ici les séparations radiochimiques, ni les techniques spéciales comme la dilution isotopique. De même, nous ne chercherons pas à doser des quantités très faibles ou des éléments peu pratiques (émetteurs à périodes courtes, par exemple).

Dans la partie expérimentale nous montrerons les différents spectres obtenus mais, nous allons tout de suite illustrer cette méthode par deux exemples :

DOSAGE QUALITATIF : papier avec trace de cuivre.

Le cuivre doit être proscrit du papier photographique même à l'état de traces car il produit, par un phénomène de pile locale une oxydoréduction non compatible avec une émulsion photographique.

Nous exposons dans le même canal deux papiers : l'un contient des impuretés de cuivre, l'autre sert de témoin.

Le cuivre ayant une période de 12,8 h et une section efficace de 3,12 barn s'active bien ; nous irradions pendant le temps Maximum à EL_2 soit 155 h à un flux de

$$2,4 - 10^{10} \text{ n/cm}^2\text{. s} ;$$

nous obtenons pratiquement la saturation ; puis nous attendons un jour de décroissance pour éliminer les périodes courtes.

Nous avons étudié l'échantillon et le témoin au spectrographe.

Le Cuivre est caractérisé par un rayon gamma de 1,38 Me.V. représentant 0,5 % du rayonnement et un pic d'annihilation à 511 k.e.V.

Portons sur le même graphique les deux spectres ; si, malheureusement, le pic à 1,38 M.e.V. est masqué par celui du Sodium contenu dans le papier nous voyons nettement le pic d'annihilation.

Il est difficile de dissocier les spectres de Na et Cu, car ces deux corps ont deux périodes très voisines:

Na : 15 h

Cu : 12,8 h

La seule différence, sur laquelle nous pourrions jouer, est la section efficace :

Na : 0,54 barn

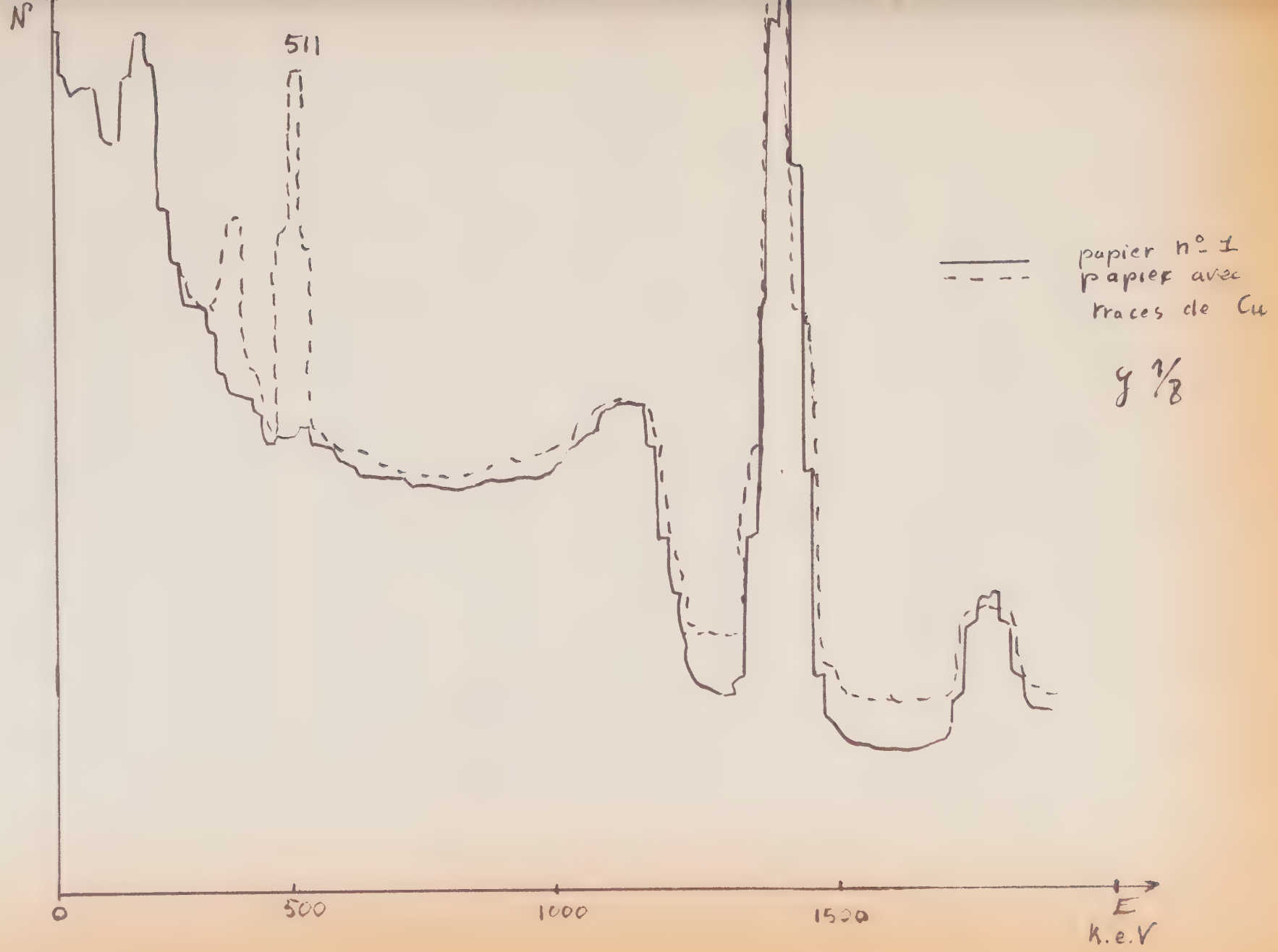
Cu : 3,12 barn

Mais, le Sodium, se trouvant en beaucoup plus grande quantité que le Cuivre, réduit cette différence par le jeu des proportions.

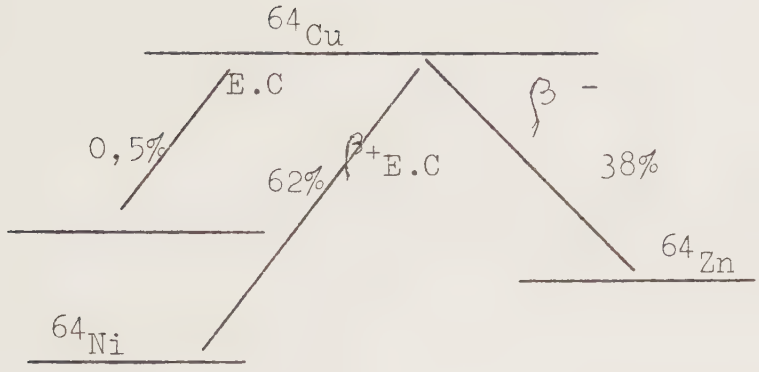
Si l'on essaye de faire une autoradiographie, le Sodium avec un rayon beta de 1,39 M.e.V. masquera les 39 % à 0,57 M.e.V. de β^-

et les 19 % à 0,65 M.e.V. de β^+

provenant de la décomposition suivante du cuivre



g 1/8



DOSAGE QUANTITATIF : Dosage du Sodium dans la gélatine

Ce dosage a été effectué pour savoir si la quantité de Sodium 24, ajoutée sous forme de $Na_2 Co_3$, dans la gélatine augmentait de beaucoup la quantité de Sodium inerte contenu sous forme d'impureté dans cette même gélatine.

Lors de la description des réacteurs, il est apparu que le flux ne pouvait pas être déterminé avec grande précision et que la section efficace variait avec la vitesse des neutrons.

Une méthode d'analyse, dite "absolue", qui consiste à appliquer la formule de l'activation est imprécise et ne peut être valable que dans le domaine semi-quantitatif (les paramètres sont connus avec une faible précision).

La méthode la plus rapide, dite "par comparaison", consiste, après l'analyse qualitative, qui a permis la connaissance des différents corps, à irradier l'échantillon avec un témoin contenant une quantité connue de l'élément à doser.

Echantillon et témoin sont placés dans le même tube et, par conséquent, soumis au même flux.

Les facteurs entachés d'erreur comme la section efficace, flux, etc... sont éliminés quand nous formons le rapport.

Pour doser le Sodium dans la gélatine nous avons employé le citrate trisodique :

$C_3 H_5O - (COO Na)_3 - 5,5H_2O$ de masse moléculaire : 357,18

Le carbonate neutre ou acide aurait aussi bien convenu mais le rapport Na/Masse totale est plus faible dans le citrate et se rapproche davantage de notre cas.

EXPERIENCE

Irradiation de 88,7 mg de gélatine

51,6 mg de citrate

Flux $2,4 \cdot 10^{10}$ n/cm^2.s

Temps d'irradiation : 17 heures

Temps de décroissance : 3 heures

Une heure après le défournement la dose de radiation du tube de polythène est de 70 mR/h au contact.

Une manipulation rapide est nécessaire pour sortir les échantillons afin d'éviter une irradiation inutile. L'emploi de gants est obligatoire du fait que le tube de polythène peut être contaminé par un séjour dans le canal du réacteur.

Les deux poudres avaient été scellées dans des sachets de polythène afin de faciliter leur évacuation du tube. Avant de procéder à l'analyse il convient de changer les sachets : ceux-ci ayant été soumis eux-mêmes à l'irradiation, ont vu leurs impuretés s'activer ; ils pourraient ainsi fausser les résultats surtout dans le cas du Sodium .

Un dosage, effectué au laboratoire, a permis de doser les quantités de Sodium dans les tubes et sachets de polythène.

On relève :

3,45 p.p.millions de Na pour les plaques

4 - pour les gros tubes

0,95 - pour les tubes

Le remplacement des sachets étant effectué, on trace les spectres à l'aide du spectrographe 100 canaux déjà indiqué.

INTERPRETATION DES RESULTATS

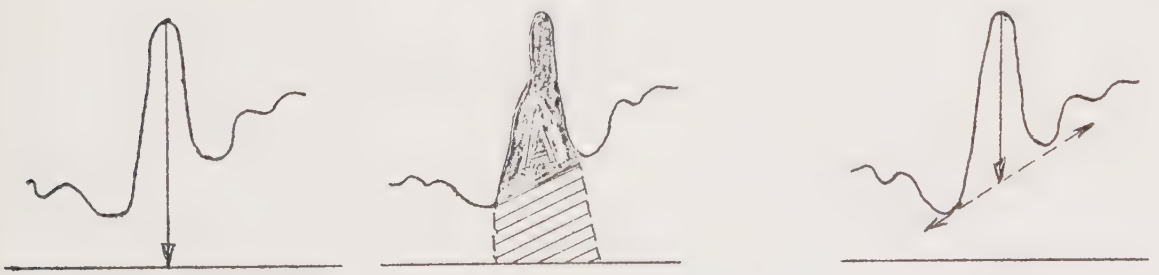
Pour relier des données spectrométriques (position du pic, hauteur) à une quantité de matière il existe principalement trois méthodes :

1)- Pour un radioélément déterminé la hauteur totale du pic est proportionnelle à la quantité de radionuclide (fig. a)

Cette méthode est inutilisable car le pic ne peut être séparé du bruit de fond continu et il s'en suit une grosse erreur.

2)- Liaison entre la surface A et cette même quantité (fig. b)

3)- Utilisation de la hauteur relative déterminée entre les tangentes inférieures et le pic lui-même (fig. c)



(a) Hauteur réelle

(b) surface

(c) Hauteur relative

La troisième méthode est la plus simple et donne de bons résultats. Nous l'avons toujours employée.

Il convient de noter que du plus en plus on calcule la surface du pic en additionnant le nombre de coups enregistré relatif à la courbe spectrale par la machine imprimante, et en retranchant de ce total le nombre de coups relatif au trapèze situé à la base du pic.

MESURES (cf. fig. page suivante)

Le témoin a été placé à 13 cm du cristal.

durée de stockage des impulsions :

1 mn

La gélatine a été placée dans la même géométrie mais elle a nécessité un stockage de 10 mn du fait de sa faible activité.

A l'enregistrement nous avons pris des sensibilités différentes, de façon à réduire l'erreur de mesure sur le graphique en majorant autant que possible la hauteur du pic. Nous prenons une sensibilité qui permet d'enregistrer au maximum 8 191 coups (N Max) pour un pic ayant la hauteur totale du graphique puis nous prenons celle correspondant à 511 coups.

Nous avons mesuré le pic de 1,37 M.e.V.

car l'erreur est beaucoup plus grande sur celui de 2,76 M.e.V.

Citrate : 135 mm pour 51,6 mg de citrate

soit : $\frac{51,6 \times 69}{357,15} = 9,96$ mg de Na

Gélatine : 113 mm pour 88,7 mg de gélatine

mais avec le rapport $\frac{1}{10}$ pour le stockage

" " $\frac{511}{8191} = \frac{1}{16}$ pour l'enregistrement

soit : $\frac{118}{}$ mm

Quantité de Na par milligramme de gélatine

$$\frac{9,96 \times 118}{135 \times 160 \times 88,7} = 61 \cdot 10^{-5} \text{ mg}$$

soit 0,061 % de Na

C - "SPECTROGRAPHIE" BETA

Pour de nombreux éléments il était essentiel de tracer ce que l'on appelle souvent par analogie aux gamma le "Spectre beta" et qui est en réalité une courbe d'absorption, afin de connaitre l'élément qui s'active et son énergie maximale. Il existe pour cela deux catégories de méthodes :

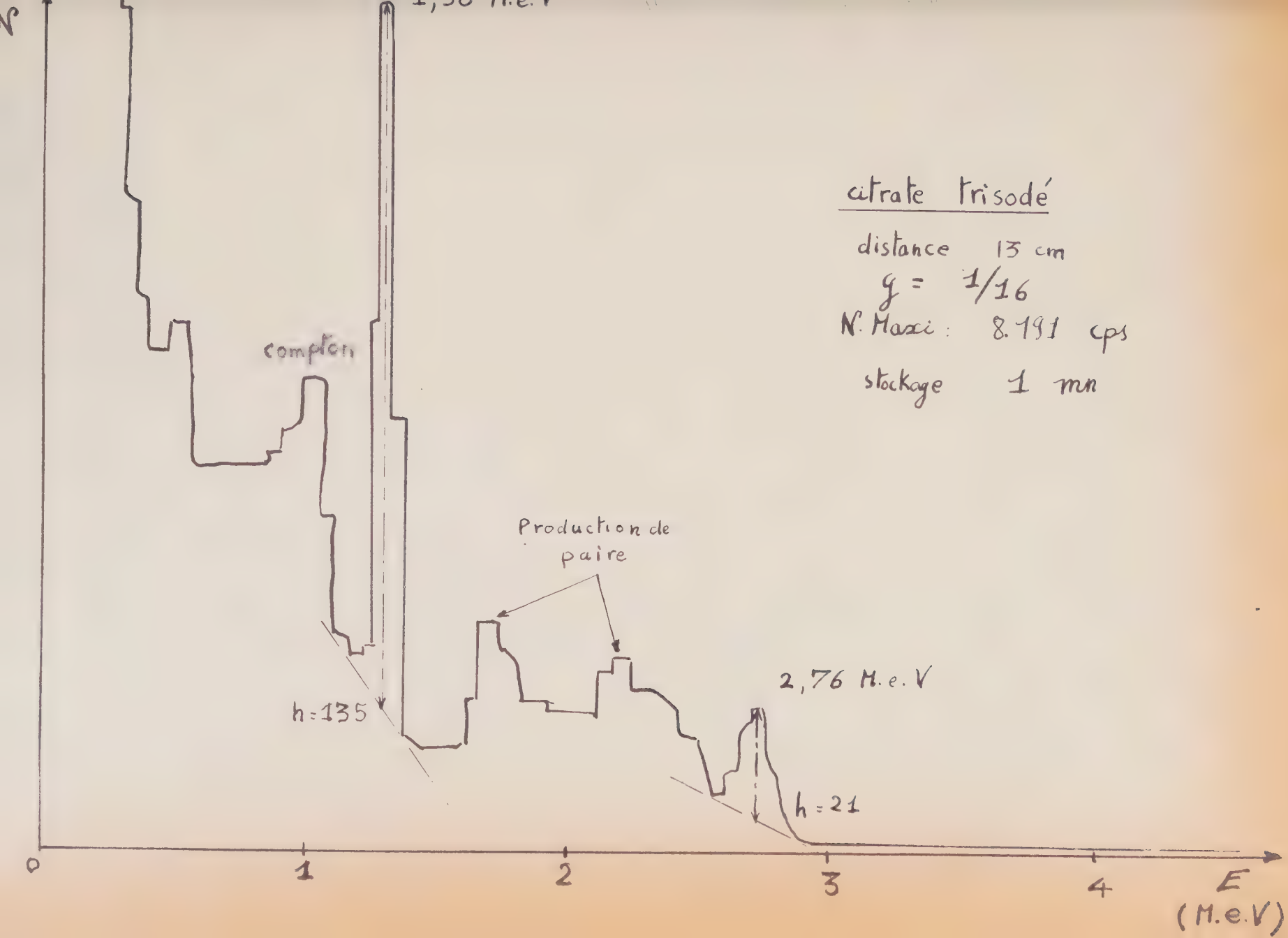
1 - Détermination de la période

2 - Détermination de l'énergie du rayonnement émis.

1°) MESURE DES PERIODES -

Avec le système classique, compteur "GEIGER-MULLER" à fenêtre mince associé à une échelle de comptage on a étudié la décroissance de l'échantillon : en traçant le graphique en coordonnés semi-logarithmiques nous obtenons directement la période à partir de la pente. Dans le cas d'un mélange nous retranchons les différentes pentes et les périodes apparaissent ainsi.

Il faut noter que nous ne pouvons pas étudier les périodes trop longues (supérieures à 10 jours) d'autre part, on ne peut pas séparer deux périodes trop voisines. Si l'on utilise un dispositif à chambres différentielles on détermine des périodes plus longues, mais il faut utiliser des sources très actives et il n'est pas toujours possible de séparer deux périodes très voisines.



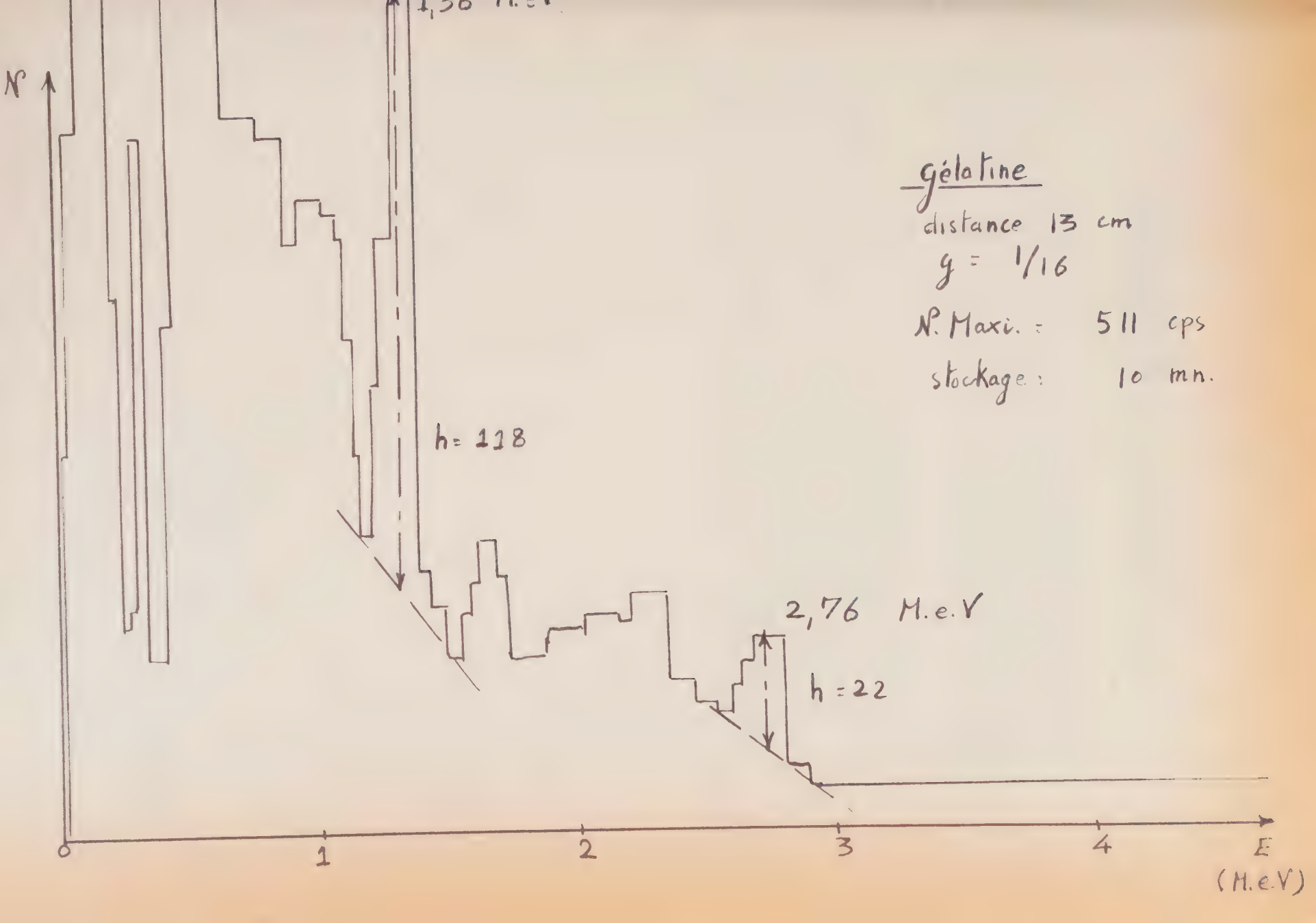
citrate trisodé

distance 13 cm

$g = 1/16$

N. Maxi : 8.191 cps

stockage 1 mn



Gélatine

distance 13 cm

$g = 1/16$

N. Maxi. : 511 cps

stockage : 10 mn.

2°) IDENTIFICATION par l'ENERGIE du RAYONNEMENT EMIS -

L'appareil à lentille magnétisante étant trop onéreux et d'une technique délicate on utilise plus souvent la méthode qui étudie l'absorption du rayonnement par la matière : la courbe du Logarithme de l'activité en fonction de l'épaisseur de l'absorbant permet de déterminer le parcours R dans la substance écran.

Ce parcours est l'épaisseur de l'absorbant correspondant au point à tangente verticale de la courbe d'absorption de ce corps. L'expérience se heurte à plusieurs difficultés car même avec des écrans réduisant la fraction transmise à 10^{-4} de l'intensité initiale, la tangente est impossible à déterminer avec précision (fig. 1). Plusieurs auteurs ont proposé des solutions pour lever l'indétermination qui en résulte.

FEATHER a proposé de comparer la courbe d'absorption étudiée à celle du RaE ($^{210}_{83}Bi$) pris comme étalon ; cette méthode, plus précise que la simple courbe d'absorption, est longue et nécessite de poursuivre les mesures jusqu'à des grandes épaisseurs d'absorbant pour éliminer les erreurs dues aux différentes formes de courbe d'absorption.

BLEULER et ZUNTI établirent par le calcul les différentes courbes d'absorption en tenant compte des différents paramètres :

Energie Maximale

Charge Z

Spectre interdit

et leur réseau de courbes permet d'apporter les corrections nécessaires aux courbes expérimentales.

HARLEY et HALDEN ont défini une méthode expérimentale qui utilise la courbe, tracée en coordonnées logarithmiques de la fraction transmise, d'un rayonnement en fonction de la fraction transmise relative à un autre corps pris comme étalon. (Ex : ^{32}P) et ceci pour différents absorbants. La courbe pour un radionuclide pur est une droite dont la pente caractérise l'énergie Maximale.

Nous allons comparer les formules donnant le parcours R dans l'aluminium en fonction de E_{Max}.

FEATHER

$$\begin{cases} R = 0{,}543\ E_{\beta\ Max.} - 0{,}160 \\ \text{pour } E_{\beta\ Max.} > 0{,}8 \text{ M.e.V} \end{cases}$$

GLENDENIN

$$\begin{cases} R = 0{,}542\ E_{\beta\ Max.} - 0{,}133 \\ \text{pour } E_{\beta\ Max} > 0{,}8 \text{ M.e.V} \\ R = 0{,}407\ E^{1{,}38}_{\beta\ Max.} \\ \text{pour } 0{,}15 \text{ M.e.V} < E_{\beta\ Max.} < 0{,}8 \text{ M.e.V} \end{cases}$$

FLAMMERSFELD $R = 0,11 \left(\sqrt{1 + 22,4\ E^2_{\beta\ Max.}} - 1\right)$

BLEULER et ZUNTI

$$\begin{cases} R = 0,571\ E_{\beta\ Max.} - 0,161 \\ \text{pour } E_{\beta\ Max} > 1\ \text{M.e.V} \end{cases}$$

R étant exprimé en g / cm^2

E - en M. e. V

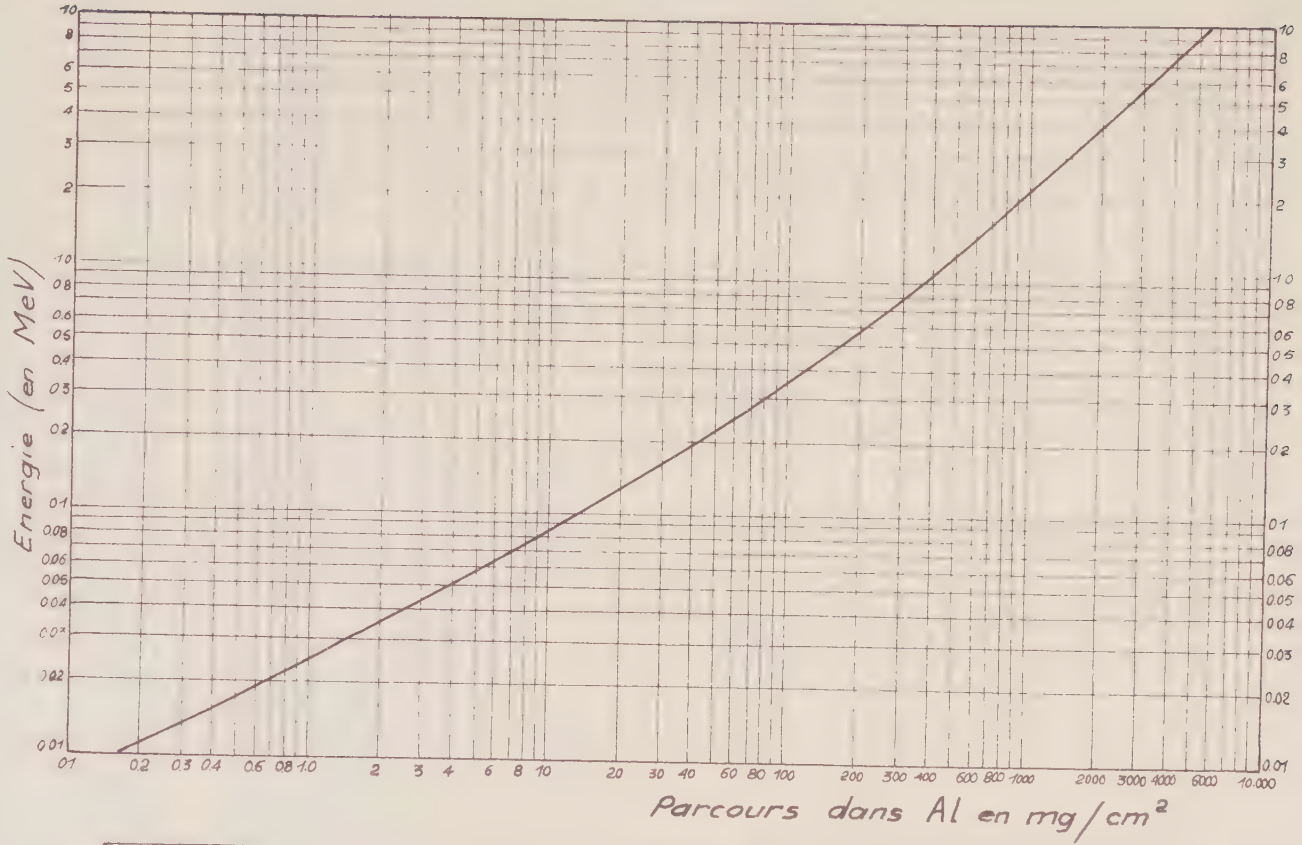
en appliquant ces différentes formules au ^{32}P d'énergie Maximale 1,7 M.e.V nous obtenons :

782	mg / cm^2	pour	FLAMMERSFELD
766	"	"	FEATHER
793	"	"	GLENDENIN
810	"	"	BLEULER

Nous avons utilisé la méthode de FEATHER décrite avec précision par CORYELL et SUGARMAN.

Dans cette méthode, l'hypothèse de départ est que pour un spectre donné, l'épaisseur d'absorbant, correspondant à une certaine fraction du parcours maximal diminue l'intensité des rayons beta, dans le même rapport que l'épaisseur d'absorbant correspondant à la même fraction de parcours maximal des autres émetteurs béta.

Par cette méthode les courbes d'absorption sont comparées au RaE.



Relation parcours - energie des rayons β dans l'aluminium.

DECROISSANCE DE LA COURBE D'ABSORPTION STANDARD

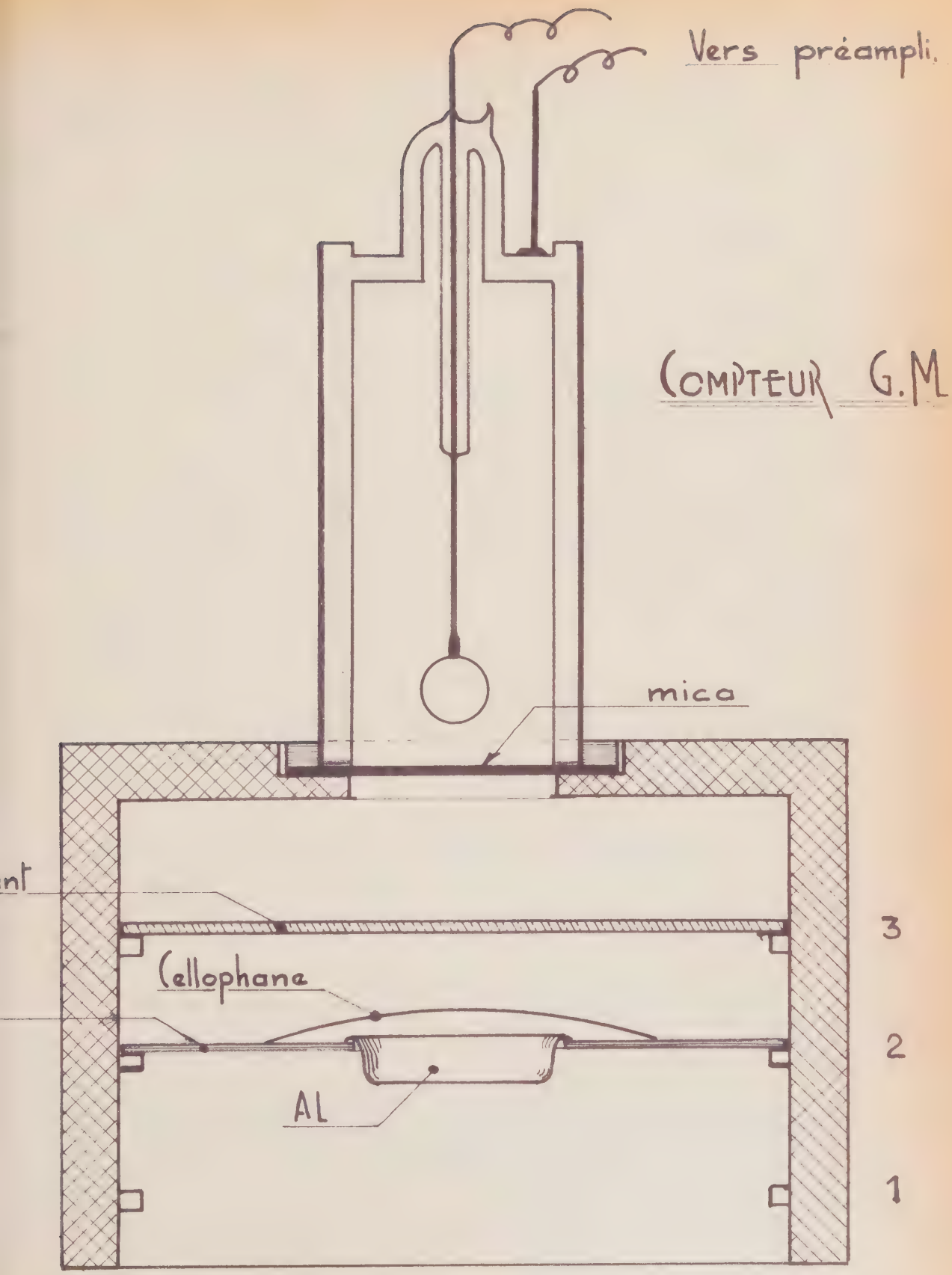
ABSORBANT mg/cm^2	FRACTION de PARCOURS	POSITION ECRAN - ABSORBANT ✱		
		Source sur rayon 1 absorbant dessus	Source sur rayon 2 absorbant dessus	Source rayon 3 absorbant rayon 2
0	0	1,000	1,000	1,000
47,6	0,1	0,45	0,53	0,54
95,2	0,2	0,20	0,265	0,27
142,8	0,3	0,094	0,122	0,14
190,4	0,4	0,0425	0,054	0,064
238,0	0,5	0,0185	0,023	0,027
285,6	0,6	0,0077	0,0099	0,011
333,2	0,7	0,00305	0,0038	0,0045
380,8	0,8	0,00112	0,00136	0,00165
428,4	0,9	0,00033	0,00042	0,00049

(✱ cf. schéma page suivante)

Nous avons toujours utilisé la 3ème position : source sur rayon 3 et l'absorbant sur rayon 2. L'échantillon à analyser était placé dans une coupelle d'aluminium, elle-même, centrée dans un carton qui imposait une position bien déterminée et reproductible ; le tout était recouvert d'une mince feuille de cellophane pour empêcher toute contamination.

La correction du bruit de fond était en général négligeable par le fait que le compteur se trouvait dans une enceinte de plomb.

La perte au comptage, établie une fois pour toute, avait été faite à l'aide d'un émetteur à période courte : Dysprosium 165 de 2,35 heure.


Vers préampli.
COMPTEUR G.M
mica
nt
3
Cellophane
2
AL
1

Le compteur était un 13 A 6 de L. C. T. dont les caractéristiques principales sont :

Seuil G.M.	1350	V
Palier	300	V
Tension utilisée	1550	V
Mouvement propre	14	Cps par mn
Remplissage	Helium - Argon Vapeur organique	

L'étalonnage de la géométrie du compteur dans les positions : source en 3, absorbant en 2 avait donné des coefficients de FEATHER analogue à ceux trouvés par ce dernier dans le même cas.

METHODE de MESURE de E β MAX.

On trace la courbe Log N en fonction de l'absorbant total (absorbant en aluminium + 12mg/cm^2 dus à la cellophane, à l'air et à la fenêtre du compteur). S'il apparait un bruit de fond de gamma on le soustrait.

A l'aide de la courbe et des coefficients de FEATHER on trouve les dixièmes de parcours.

Ex : Soit N le nombre de coups/mn sans écran après soustraction du bruit de fond.

le 1/10 de R correspond à l'abcisse du point de la courbe ayant pour ordonnée Log. 0,54 N

3/10 de R à Log. 0,14 N, etc...

On fait la moyenne des différents R et on en déduit, grâce à la courbe E = f (R), l'énergie E β Max. avec bonne approximation.

PRINCIPALES CAUSES d'ERREURS

Nous retrouvons toutes les causes classi - ques du comptage béta ; retrodiffusion, autoabsorp- tion, diffusion dans l'enceinte blindée, absorption due à la couche protectrice de cellophane, à l'air et à la fenêtre du compteur, géométrie du compteur.

- Absorptions parasites

Celles ci énumérées ci-dessus peuvent être évaluées en étalonnant le compteur à l'aide d'un émetteur beta connu.

FEATHER a évalué le rôle de ces diverses absorptions comme équivalent à l'action de 12 mg/cm^2 il faudra donc ajouter cette valeur à l'épaisseur du compteur.

Nous avons cherché à réduire au maximum ce facteur en imposant une position standard à l'échan- tillon à étudier ; de plus le porte-échantillon avait exactement le même diamètre que le compteur soit 30 mm.

EXEMPLE d'UNE ANALYSE BETA -

Colle V.M.S. 12

A) COURBE d'ABSORPTION

Nous avons tracé la courbe N = f (épais- seur d'écran) cf. tableau de valeurs et courbe page suivante.

Dans le tableau nous apportons les diffé- rentes corrections dues aux absorptions supplémen- taires, à la perte au comptage ; comme dans la co- lonne (5) nous constatons pour les épaisseurs éle- vées qu'il y a toujours un nombre constant de coups quelque soit l'épaisseur de l'écran (pour des épais- seurs de 494, 800 et 1000 mg/cm^2) ; ce nombre est dû à une composante gamma du corps que nous aurons donc à retrancher.

Nous traçons alors (6) en fonction de (1) En extrapolant à 0 mg/cm^2 nous trouvons un nombre de 26.000 cp/mn en l'absence d'écran.

Nous appliquons les coefficients de FEATHER dans la position 3 et nous trouvons les différentes fractions de parcours.

COURBE de la COLLE V.M.S.$_{12}$

ECRAN mg/cm^2 (1)	ECRAN TOTAL (1) + 12 mg/cm^2 (2)	NOMBRE de Coups/mn lu (3)	PERTE au comptage (4)	NOMBRE de Coups/mn réel (3) + (4) (5)	NOMBRE de Coups /mn (5) - 950 (6)
0	12	22.000	2.300	24.300	23.350
5	17	20.740	2.000	22.740	21.800
10	22	19.160	1.600	20.760	19.800
18	30	17.840	1.400	19.240	18.300
31	43	15.655	900	16.550	15.600
51,3	63,3	10.750	500	11.250	10.300
200	212	3.710	50	3.760	2.800
250	262	2.270	22	2.300	1.350
324	336	1.540	10	1.550	600
494	506	940	0	940	0
800	812	950	0	950	0
1 000	1 012	940	0	940	0

FRACTION de PARCOURS	COEFFICIENT de FEATHER	NOMBRE de COUPS/ mn	PARCOURS DEDUIT DE LA COURBE	R mg/cm^2
0	1	26.000		
0,1	0,54	14.050	55	550
0,2	0,27	7.000	115	575
0,3	0,14	3.650	175	583
0,4	0,064	I.665	240	600
0,5	0,027	700	315	630
0,6	0,011	285	390	650
0,7	0,045	117	468	670
0,8	0,0165	30		
0,9	0.0005	13		

$$R \text{ moyen} = \frac{4253}{7} = 608,3 \text{ mg/cm}^2$$

$$R = \frac{250,3}{7} = 34,3$$

$$R = 608 \pm 34 \text{ mg/cm}^2$$

Précision 5%

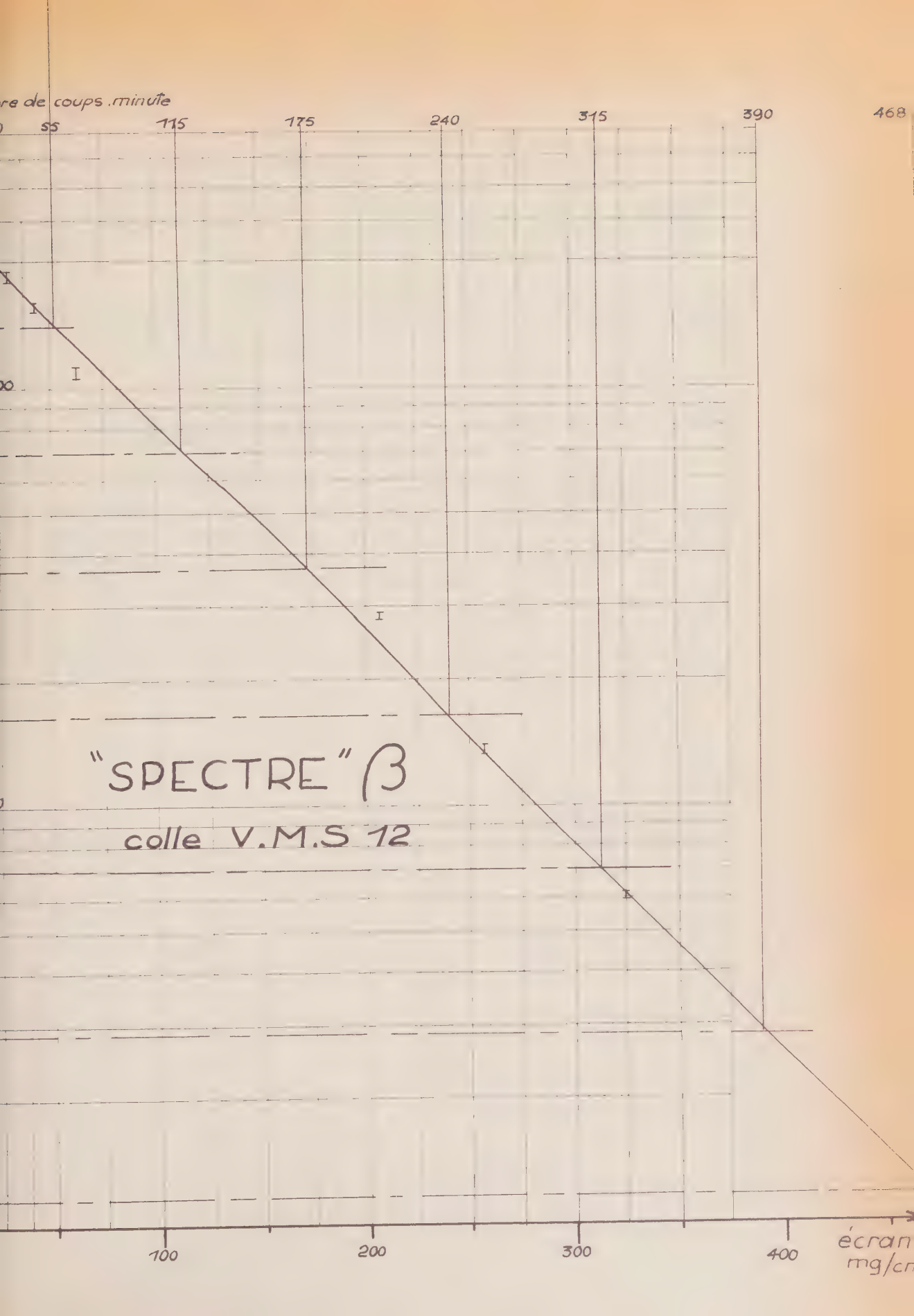
Calcul de E_{β} Max.

par la formule de FEATHER

$$R = 0,543 \; E_{\beta \text{ Max}} - 0,160$$

R g/cm^2
E M.e.V

$$E_{\beta} = \frac{0,608 + 0,160}{0.543} = \frac{0.768}{0,543}$$


re de coups . minute
55
115
175
240
315
390
468
"SPECTRE" β
colle V.M.S 12
100
200
300
400
écran
mg/cm

$$E_{\beta\ Max.} = 1,41\ M.e.V$$

Si on utilise le graphique $R = f(E_{\beta Max})$ ci-après, on lit directement :

$$E_{\beta\ Max.} = 1,4\ M.e.V$$

le corps émet un rayon béta de 1,4 M.e.V sans compter les rayons gamma.

B) DECROISSANCE

Nous avons utilisé le même ensemble de comptage que pour les mesures d'absorptions. Nous prenons le nombre de coups à des temps différents, Par définition la période sera le temps mis pour passer du nombre N au nombre N/2.

Nous groupons les résultats des mesures et joignons la courbe sur laquelle nous lisons directement T = 16 h.

C) CONCLUSION

L'émetteur se trouve être le ^{24}Na qui a une période de 15 h. et émet :

2 gamma (1,37 M.e.V
(2,76 M.e.V

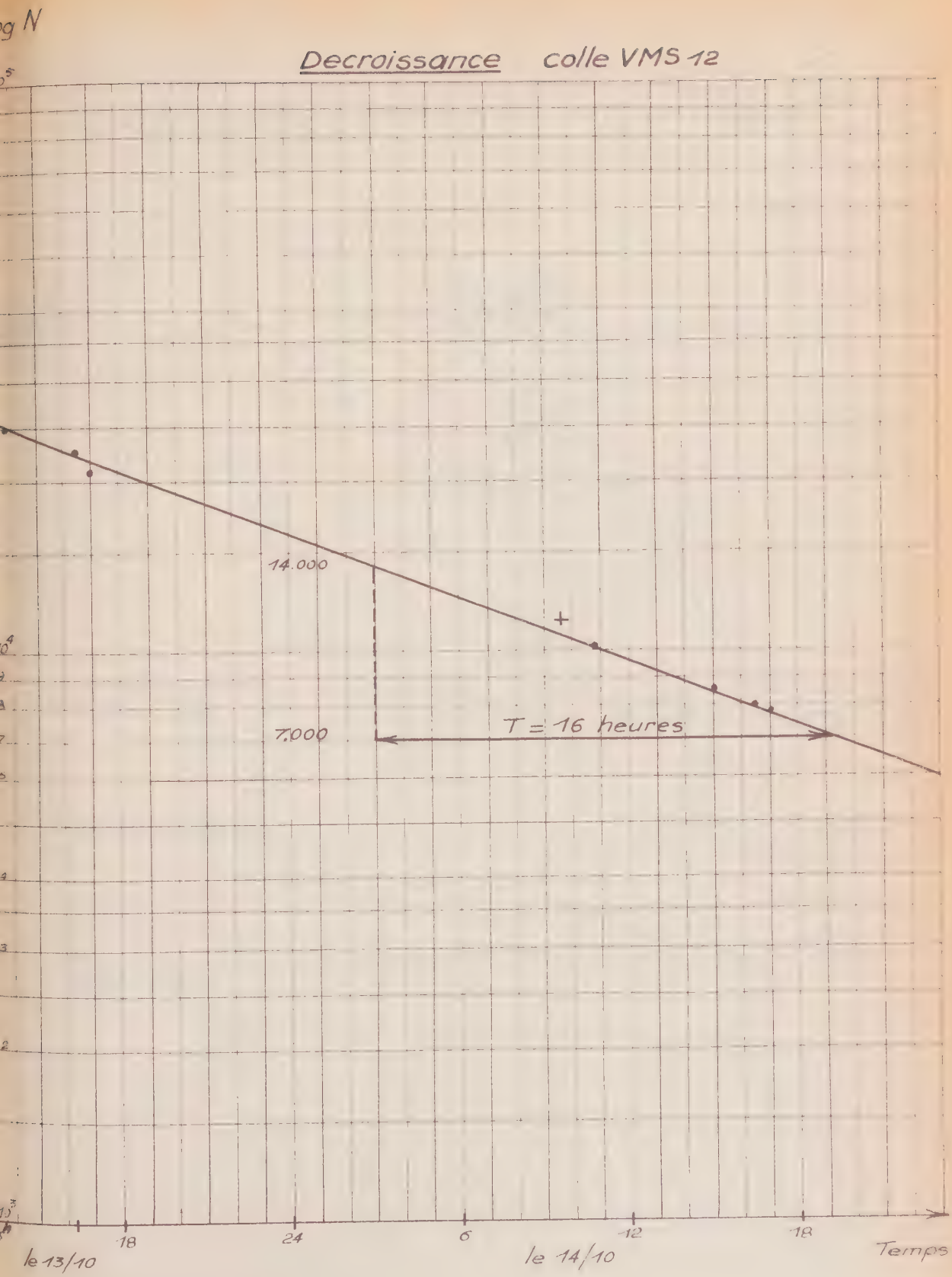
1 beta 1,39 M.e.V

COURBE DE DECROISSANCE

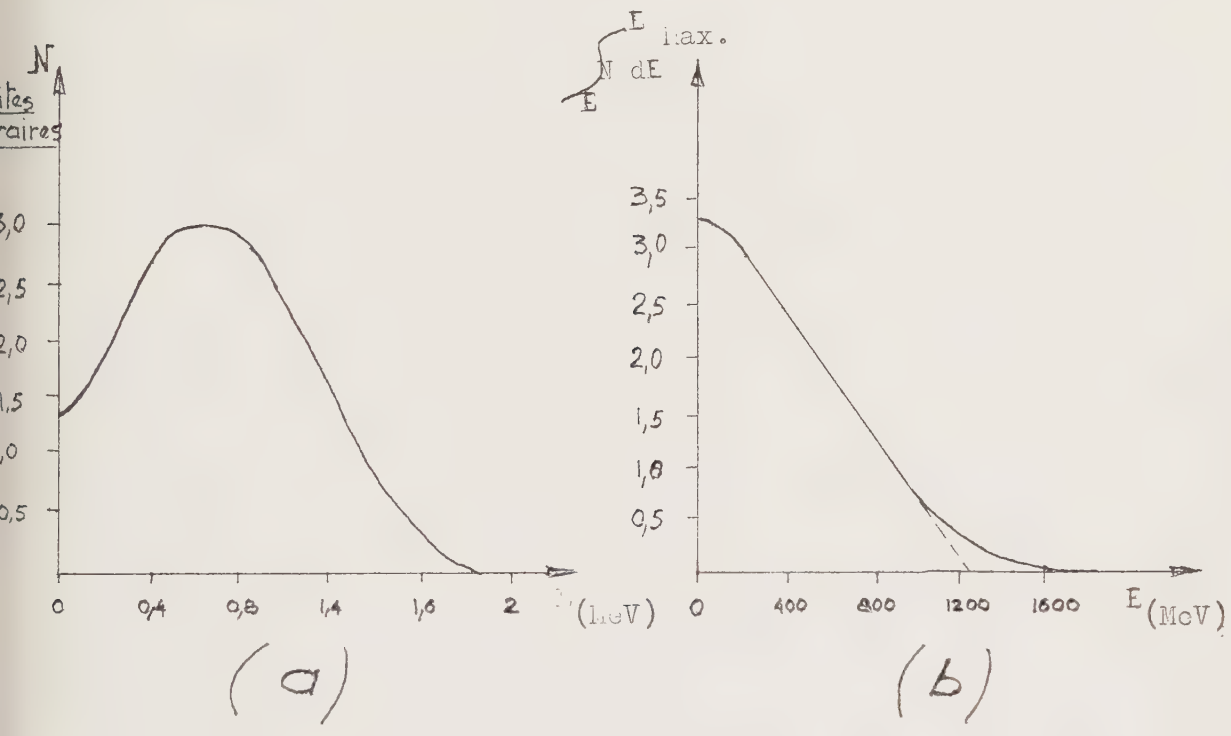
		NOMBRE de coups/mn lu	PERTE au comptage	NOMBRE de coups/mn réel
le 12/9	13h	22.000	2.300	24.300
	16h15	20.550	2.000	22.500
	17h	19.100	1.600	20.700
le 13/9	9h30	10.900	450	11.350
	15h	8.550	280	8.720
	16h30	8.000	250	7.750
	17h	7.870	230	7.640
le 14/9	9h45	3.780	55	3.725
	11h	3.530	50	3.480

Nous avons déterminé l'énergie beta maximale à 5% près et la période à 6% près.

Nous avons vu que les analyses gamma sont souvent obtenues avec une meilleure précision mais surtout avec une rapidité beaucoup plus grande grâce au spectrographe multicanaux. Le handicap du temps d'analyse, qui défavorise les émetteurs beta vient d'être considérablement réduit grâce à une nouvelle méthode mise au point par Messieurs LE GALLIC, LEGRAND et GRINBERG (G.L.G.) du Centre Nucléaire de SACLAY. Nous nous étendrons un peu plus sur cette méthode encore peu connue : elle permet l'identification rapide des radioéléments émetteurs β .


Log N
Decroissance colle VMS 12
14.000
7.000
T = 16 heures
18
24
6
12
18
le 13/10
le 14/10
Temps

Si l'on considère la courbe théorique du ^{32}P (fig.a) et si on trace la courbe intégrale (fig.b) on constate que la courbe a une partie rectiligne de 0,4 à 0,9 M.e.V



(a) (b)

en extrapolant cette droite on trouve une énergie de:

$$E_e = 1.225 \text{ k.e.V}$$

Il a été procédé de même pour des émetteurs tels que :

^{32}P, ^{90}Y, ^{143}Pr, ^{90}Sr, ^{45}Ca, ^{147}Pm,

^{35}S.

Les trois auteurs ont cherché s'il y avait un lien entre cette énergie et l'énergie Maximale du radioélément. La courbe Ee = $f(E_{max})$ comporte une partie rigoureusement linéaire pour les énergies supérieures à 0,9 M.e.V d'équation :

$$E_e = 0{,}88\ E_{\beta\ max} - 0{,}27$$

au dessous de 0,9 M.e.V la courbe n'est plus rectiligne.

Les trois auteurs cherchèrent à vérifier cela expérimentalement à l'aide de méthodes spectrométriques courantes : un scintillateur d'anthracène de 5 mm d'épaisseur et 44 mm de diamètre, protégé de la lumière par une mince fenêtre d'Aluminium (2,5/100 mm).

L'ensemble scintillateur - photomultiplicateur et préamplificateur était suivi d'un amplificateur à gain variable T.A.P. 10.000 dont le gain peut prendre plusieurs valeurs de 1 à 10.000.

Afin de pouvoir étudier des corps peu énergétiques comme le ^{35}S de 0,165 M.e.V, donc donnant des impulsions de faible amplitude, ils utilisèrent toujours le gain Maximum.

Entre le T.A.P. 10.000 et l'échelle de comptage était intercallé un discriminateur. Ils étudièrent tous les corps précédents avec, en plus

$$^{204}Tl \quad \text{et} \quad ^{137}Cs$$

Dans le cas d'émetteurs "beta-gamma" tels que le ^{137}Cs le rayonnement gamma (0,661 M.e.V) ne provoque dans l'anthracène qu'un effet Compton peu important et le corps peut donc être étudié comme un émetteur béta pour ce qui n'est malheureusement pas le cas du ^{60}Co en raison de ses énergies trop fortes :

$$E_{\gamma 1} = 1{,}17 \text{ M.e.V}$$

$$E_{\gamma 2} = 1{,}33 \text{ M.e.V}$$

$$E_{\beta\ Max} = 0{,}306 \text{ M.e.V}$$

Avec tous ces corps nous traçons les courbes :

$$N_{c/mn} = f(V)$$

V = potentiel de discrimination

ils groupent ensuite les différents V en une courbe:

$$V = f(E_{\beta\ Max.})$$

Comme le laissait supposer la théorie déduite de l'analyse Ee = f ($E_{\beta\ Max.}$) et en accord complet avec la théorie générale de l'émission beta G.L.G. trouvent une droite permettant de lire directement l'énergie E_{β} Max. en fonction du seuil V, l'appareil étant une fois pour toute étalonné.

AVANTAGES DE LA METHODE :

La méthode exposée nous semble présenter par rapport aux méthodes habituelles un certain nombre d'avantages :

- Rapidité

  30 minutes d'analyse suffisent.

- Bonne reproductibilité permettant de s'affranchir de conditions expérimentales bien définies (comme c'est le cas dans la méthode de FEATHER).

- Précision plus grande que les autres méthodes

pour $E_{\beta\,Max.}$ = 1,7 M.e.V

Méthode C.E.A. (G.L.G.) $\frac{AE}{E}$ = 2%

Absorption $\frac{AE}{E}$ = 5%

pour $E_{\beta\,Max.}$ = 0,3 M.e.V

Méthode C.E.A. (G.L.G.) AE/E = 5%

Absorption AE/E = 7%

Nous avons employé cette méthode avec un cristal d'anthracène et un plastique scintillant ; nous rappelons quelques caractéristiques de ce cristal.

Caractéristiques de l'Anthracène :

Spectre d'émission : 4.480 Å

Spectre d'absorption : début à 4.050 Å

Rendement pour les beta : moitié celui de I Na (pris comme référence)

Constante de temps : 3.10^{-8} S.

Réponse aux particules monoénergétiques :

alpha : non linéaire

beta : linéaire entre 125 et 1.900 k.e.V

protons : non linéaire

Le cristal était monté avec un photomultiplicateur 53 A.V.P. à 11 étages et un préampli P.M.P. 20, le tout formant l'ensemble D.C.S. 30 de Lie BELIN.

Le grand bruit de fond qui masquait les émetteurs faiblement énergétiques nous a posé de sérieux problèmes. En procédant par élimination nous avons trouvé que ce bruit de fond ne provenait pas de contamination du détecteur ou du chateau de plomb mais qu'il s'agissait d'un bruit de fond électronique prenant naissance dans le P.M et dans le préamplificateur.

CAUSES DU BRUIT DE FOND DANS UN P.M.

1°- Les ions résiduels du gaz remontent vers la cathode et la bombardent, provoquant l'émission d'électrons.

2°- Un effet de champs (émission froide) peut être créé par les aspérités ou les pointes sur les électrodes.

3°- Quelques courants d'origine chimique peuvent prendre naissance dans les isolants du tube.

4°- Les particules ionisantes parasites : rayons cosmiques absorbés par les matériaux légèrement fluorescents du tube provoquent des impulsions parasites.

5°- L'émission thermoéléctronique de la photocathode constitue le facteur prépondérant.

L'émission I suit la variation

$$I = T^2 \; e^{-W/kT}$$

T = température absolue

W = travail d'extraction

k = constante de Boltzmann

On a donc intérêt à refroidir le P.M. vu l'importance du facteur T, mais cela n'était pas réalisable pour l'ensemble que nous possédions et nous avons toujours travaillé à température ambiante.

6°- L'émission retardée de photoélectrons ("AFTER PULSING"), les impulsions normales sont suivies d'une série d'impulsions parasites d'amplitude correspondant à l'émission d'un seul électron depuis la photocathode ; cet effet est dû à une émission retardée de photoélectrons sur la cathode ainsi qu'aux chocs d'ions résiduels sur cette dernière.

La méthode décrite nécessitant un bas bruit de fond nous avons cherché un P.M. offrant le bruit de fond le plus faible dans la série des 53 A.V.P.

Nous avons monté le cristal et le plastique sur plusieurs P.M. et nous avons pu vérifier certains résultats trouvés par le groupe précédemment cité. Malheureusement nos deux détecteurs étaient assez épais ce qui rendait les composantes gamma non négligeables.

Avec des détecteurs plus minces un tel ensemble rend de grands services grâce surtout à la rapidité de mesure et à la meilleure précision par rapport aux courbes d'absorption couramment utilisées.

D) AUTORADIOGRAPHIE :

Le but de l'autoradiographie est de localiser une source de Rayonnement et de faire une analyse quantitative après localisation. C'est la méthode qui permet une analyse ponctuelle et surtout qui demande un matériel réduit et très bon marché : cet aspect, même en Laboratoire de recherche, est très important.

Le principe est simple : nous mettons en contact l'échantillon contenant le corps radioactif avec une émulsion photographique : celle-ci par noircissement au dessus des endroits actifs nous permet d'avoir "l'image" de l'échantillon.

Pour comprendre les différentes caractéristiques qui interviennent dans l'autoradiographie nous rappellerons sommairement le système de formation de l'image.

Une émulsion normale est sensible à la lumière c'est-à-dire que les quanta lumineux activent les grains de Bromure d'Argent qu'ils rencontrent.

L'existence d'une "image latente" dans un grain d'halogénure d'argent définit la condition pour que ce grain soit plus aisément développable qu'un grain qui ne possède pas d'image latente.

A l'aide d'un révélateur qui est un réducteur doux, il est possible de transformer le Bromure d'Argent activé en argent pulvérulant et d'obtenir une image visible.

Cette théorie de l'insolation du Br Ag peut facilement être étendue aux radiations n'appartenant pas au spectre visible ;nous comprenons que toute radiation permettant d'activer les molécules de Br Ag peuvent donner une image latente susceptible d'être révélée. Cependant il serait faux d'extrapoler purement et simplement les résultats obtenus dans le visible du fait des différences de l'effet photolytique.

D'après les travaux de WELL nous savons que les photons absorbés par les cristaux donnent une image latente localisée en des emplacements bien déterminés en général différents du lieu de l'absorption.

La différence essentielle entre l'effet photolytique dû aux Rayonnements visibles ou Ultra-Violet et Infra-Rouge avec celui dû aux Rayons X ou gamma provient de cette localisation.

- Pour le photon lumineux l'absorption se fait en surface et les photoélectrons éjectés sont peu énergétiques : c'est donc une image latente superficielle ou externe qui se formera en premier, quand cette image arrive à son Maximum l'image interne commence à se former.

- Pour le Rayon X ou gamma l'absorption peut s'effectuer aussi bien au centre du cristal qu'en surface et les électrons éjectés seront assez énergétiques pour traverser le grain et même plusieurs : c'est donc une image latente interne aussi bien qu'externe avec le fait que l'image interne est beaucoup plus importante que l'autre.

Les différences importantes font que les lois photographiques de la lumière visible U.V ou I.R ne sont plus valables pour les Rayons X. Notamment nous ne retrouvons pas le seuil de l'effet photographique avec les Rayons X ou gamma et la densité de noircissement D est une fonction quasi linéaire de la lumination :

$$D = f(I.t)$$

Lumination = I.t

I = Intensité d'irradiation

t = temps de pose.

Seule une convention fait employer en autoradiographie les courbes caractéristiques :

$$D = f(\text{Log } I.t)$$

conçues pour la lumière visible.

Nous voyons l'importance des électrons secondaires et comme l'effet photographique de ceux-ci ou du rayonnement beta est 100 ou 1.000 fois supérieur à celui des gamma, rapport que l'on retrouve à peu près dans le cas du compteur GEIGER-MULLER; nous étudierons d'abord les différents paramètres qui influent sur le noircissement d'un film soumis à un flux électronique.

Action d'un flux d'électrons sur les différents films

DUEDLEY étudia le problème à l'aide d'un spectrographe béta ; il exprima la sensibilité en étudiant l'inverse du nombre d'électrons par cm^2 nécessaires pour obtenir une densité arbitraire de 0,3 au dessus du voile.

Dans le cas d'un film monocouche KODIREX (courbe a) les électrons au dessous de 0,1 M.e.V ne traversent pas complètement l'émulsion photographique. Si l'énergie des électrons augmente, un plus grand nombre de grains d'Argent deviennent développables et il faudra donc moins d'électrons pour obtenir la

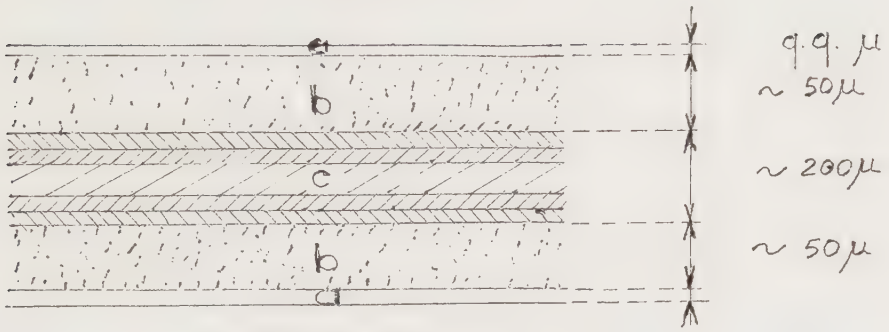
densité 0,3. A partir de 0,1 M.e.V tous les électrons traversent cette première couche et il y a une décroissance de l'effet photographique par rapport à l'énergie des électrons car l'ionisation produite décroît.

A partir du pic de 0,1 M.e.V et jusqu'à 0,8 M.e.V nous pouvons dire que la sensibilité est constante.

Si on utilise un film double, courbe b, il apparaitra un deuxième pic à 0,27 M.e.V et l'on s'aperçoit que la deuxième couche est légèrement moins sensible que la première par suite de la rétrodiffusion due à la cellulose.

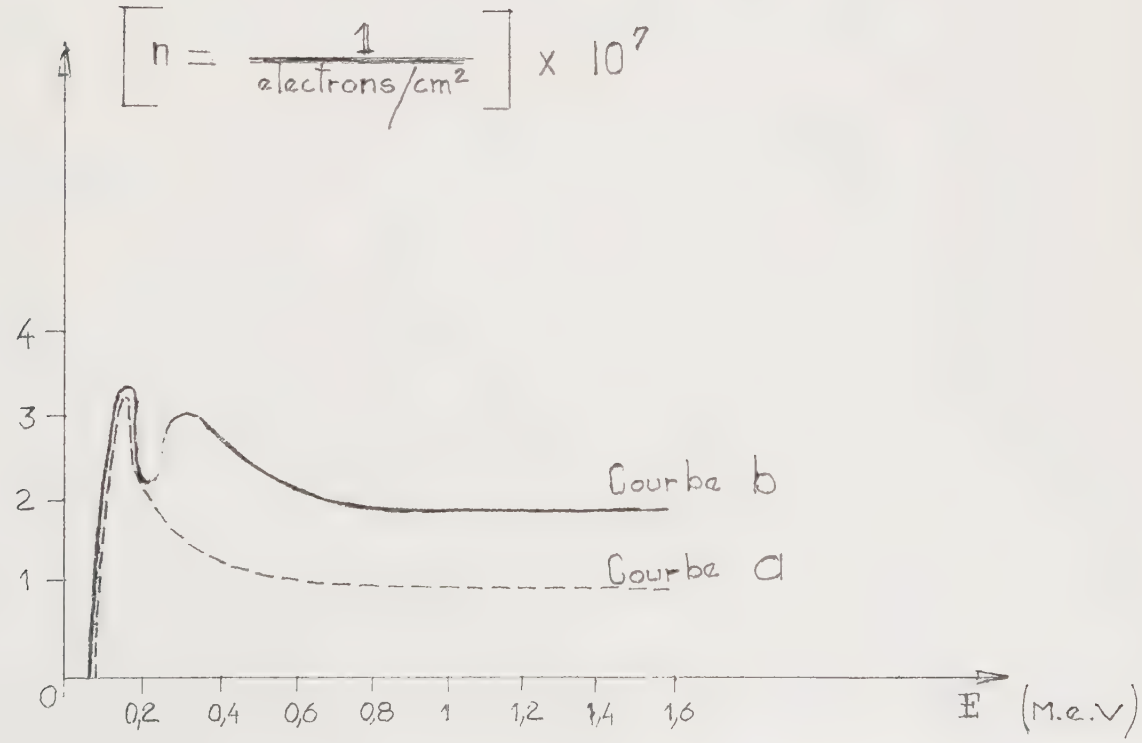
La sensibilité est à peu près constante à partir de I,6 M.e.V

STRUCTURE D'UN FILM RADIOGRAPHIQUE



a: film protecteur
b: émulsion
c: support d'acétate de cellulose

Sensibilité de l'emulsion KODIRX aux électrons



Comparaison des sensibilités des différents films

STEINBERG et SALOMON ont étudié les sensibilités des films les plus courant . à l'aide d'isotopes couvrant une grande gamme d'énergie. Ils utilisèrent notamment du :

^{14}C, du ^{45}Ca, du ^{131}I, du ^{32}P

dont les énergies Maximales Beta vont de 0,154 à I,71 M.e.V.

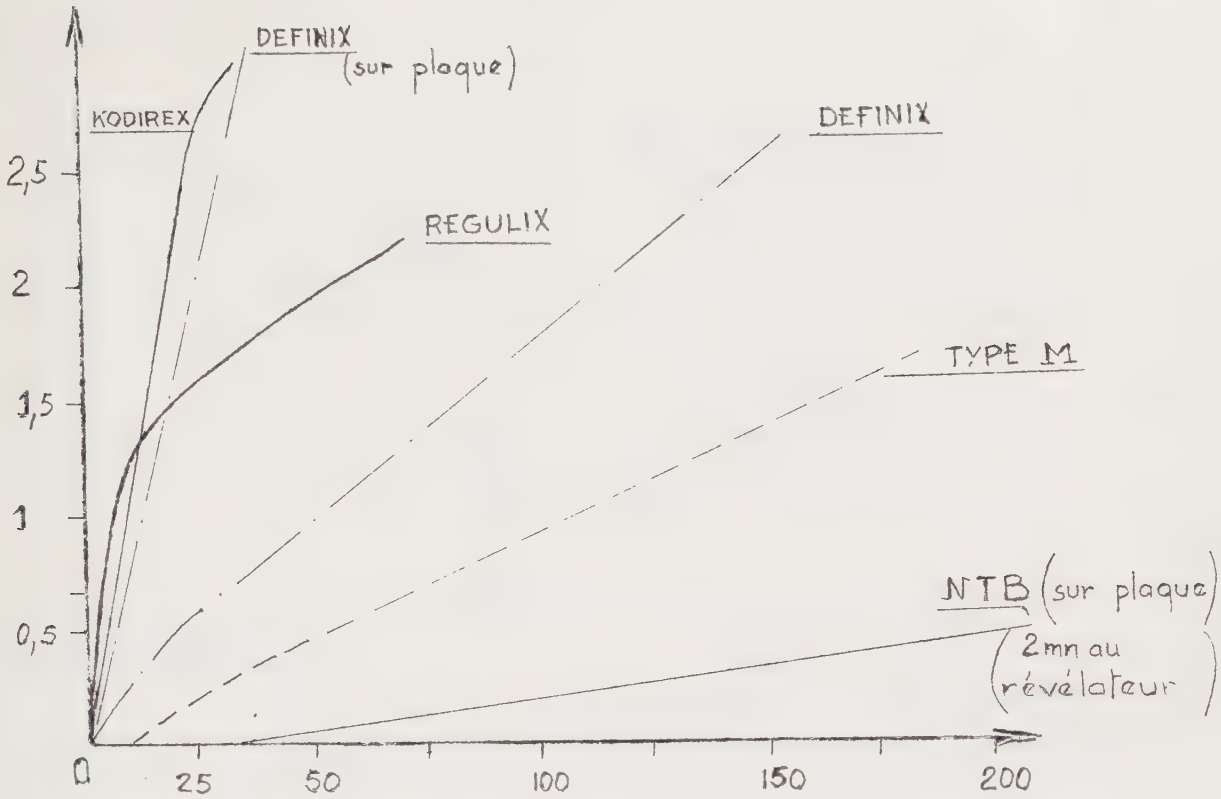
L'Iode a pu être utilisé malgré sa forte émission gamma car l'effet de ceux-ci est d'environ 0,1 à 1 % de celui de Beta.

L'étude de STEINBERG et SALOMON a porté sur quatre films à Rayon X

	CARACTERISTIQUE	Epaisseur de l'émulsion (microns)	Epaisseur du support	Halogénure d'Argent mg/cm²	Gélatine mg/cm²	% d'Halogénure d'Ag en poids
KODIREX (No Screen* X Ray)	double face	25	208	3,5	2,2	61
REGULIX (X Ray Film* type K)	"	25	273	3,1	2,4	56
Type M	"	20	173	1,6	1,7	48
DEFINIX Type A *	"	20	173	1,7	1,8	48

* Appellation Américaine des films d'EASTMAN KODAX

et sur un film nucléaire : N.T.B. qui est très proche de l'émulsion ILFORD B_2



Le REGULIX et le KODIREX sont les films les plus sensibles aux rayons beta d'énergie comprise entre 0,154 M.e.V du ^{14}C et 0,6 M.e.V de ^{131}I ainsi qu'au dessus de 2,16 M.e.V.

Dans toutes ces énergies le REGULIX est légèrement plus sensible aux faibles expositions, mais moins sensible que le KODIREX aux grandes expositions.

Le KODIREX a l'avantage d'avoir un accroissement linéaire dans une plus grande bande d'énergie que le REGULIX.

Le DEFINIX et le Type M sont juste au dessous des deux précédents, mais le DEFINIX est plus sensible aux Rayons X et aux gamma.

Le N.T.B. a la plus faible sensibilité.

Pour toutes ces émulsions il faut souligner le cas particulier du Tritium qui émet des beta de très faible énergie : 0,018 M.e.V. ; ceux-ci ne peuvent traverser qu'une seule couche de grains, donc l'épaisseur d'émulsion n'a aucune importance. Nous verrons plus loin que nous avons intérêt à éliminer la deuxième couche qui dans ce cas particulier ne nous apporte qu'un voile supplémentaire.

Ayant été habitué jusqu'à présent à utiliser des émulsions ILFORD G_5, il peut être intéressant de comparer les sensibilités des films pour Rayon X et des émulsions nucléaires de ce type.

Comparaison des émulsions Nucléaires et celles pour Rayons X :

On ne demande pas aux émulsions nucléaires une aussi grande sensibilité dans le domaine considéré que pour les types X, il faut davantage de particules beta par unité de surface, pour obtenir la même densité optique.

Cette différence de sensibilité peut être expliquée par le fait que l'émulsion type X, bien que possédant un nombre plus faible de grains d'halogénure par unité de surface, est constituée de grains plus gros que ceux de l'émulsion nucléaire. Dans cette dernière un rayon beta produit un plus grand nombre de grains développables que dans la première, mais comme dans le système de mesure de densité un grain absorbe la lumière proportionnellement à sa section, la surface sensible sera plus grande avec les grains plus larges Type X qu'avec les petits grains des émulsions nucléaires.

On voit cependant sur le graphique que le type N.T.B. n'est pas très éloigné du Type M. Il faut remarquer que si ce dernier avait un support de verre, comme c'est le cas dans l'émulsion nucléaire utilisée, l'écart serait beaucoup plus grand.

L'émulsion Nucléaire peut être utilisée avec fruit dans certaines autoradiographies particulières, notamment pour la détermination des grains de Bore dans les aciers, à la suite de la réaction

$$^{10}B(n,\alpha)^{7}Li,$$

pour localiser les alpha et les beta émis.

Nous verrons, dans l'étude de Résolution, que l'on emploie de telles plaques pour obtenir de grands pouvoirs de résolution du fait de la présence de grains extrêmement petits.

COMPARAISON KODIREX - PLAQUES NUCLEAIRES N.T.B. - TYPE M

	DENSITE de BRUIT de FOND	SENSIBILITE (Log 10) β/cm^2	CONTRASTE	DIMENSION des Grains (μ)
KODIREX	0,20	7,2	2,3	9
Type M	0,06	8,1	1,8	4
N.T.B.	0,06	9,2	2,0	1

Influence de l'epaisseur de l'émulsion sur la sensibilité :

Quand l'épaisseur augmente, la sensibilité augmente elle aussi, car pour obtenir une même densité optique il faudra moins de particules beta. Cependant l'accroissement de sensibilité n'est pas proportionnel à l'épaisseur et les raisons de cet état de chose n'ont pu être déterminées.

Quand on veut augmenter l'épaisseur de façon importante, on place le support entre deux couches d'émulsion de façon à éviter de grosses distortions; l'épaisseur d'une couche varie de 10 à 30 µ alors que le support a environ 200 µ . La firme DU PONT (U.S.A.) a fabriqué des films double-couche avec un support de 130 ce qui donne une meilleure résolution.

REMARQUE.-

Il peut être intéressant, comme dans le cas du Tritium de n'utiliser qu'une couche d'un double film et de cette façon éliminer le bruit de fond et l'image de l'autre couche. Pour cela, après une exposition classique, nous avons couvert la deuxième face avec une feuille de plastique ou un ancien film puis collé les bords avec un ruban adhésif étanche. Nous plongeons ensuite dans le révélateur, rinçons et avant de fixer, nous enlevons la feuille protectrice et nous obtenons ainsi une deuxième couche transparente.

BRUIT DE FOND.-

Le bruit évolue en général dans le même sens que la grosseur des grains et que l'augmentation de sensibilité.

FILM	VITESSE RELATIVE par rapport aux RAYONS GAMMA	BRUIT de FOND	GROSSEUR des GRAINS
KODIREX	30	Fort	Gros
REGULIX	42	Fort	Gros
Type M	3	Faible	Moyen
DEFINIX	7	Faible	Moyen

RESOLUTION.-

L'autoradiographie servant à localiser une source de rayonnement et à réaliser une analyse quantitative, on a cherché un concept liant la précision de localisation, la forme et les dimensions des sources, au matériel et aux différentes techniques utilisées, jusqu'à présent le concept le mieux adapté a été celui de résolution utilisé en optique.

L'autoradiographie ayant son domaine propre beaucoup d'auteurs se sont penchés sur le pouvoir de résolution dans ce cas précis ; chacun a donné une définition personnelle, mais le principe de base est resté le même.

- DONIACH et PELC, les premiers, étudièrent l'aspect théorique du problème en définissant à l'aide d'une source ponctuelle la résolution comme"... la distance entre le point Maximum de densité et le point où la densité est moitié..."

- NADLER employa des sources cylindriques il montra notamment que la densité de l'image au dessus d'un specimen dans lequel l'activité est répartie uniformément n'est pas constante au delà du diamètre de la source, ce qui fait souvent penser que l'activité de la source n'est pas homogène.

On a montré que la courbe de densité décroît comme l'épaisseur d'émulsion et l'interespace.

La qualité d'une autoradiographie, donnant la distribution d'un isotope dans une seule source, dépend donc des dimensions de la source, des variables géométriques citées ci-dessus et naturellement de la nature des particules ionisantes.

- GOMBERG étudia le cas de deux sources et le recouvrement de leur deux images.

- BOYD et STENVENS étudièrent plus particulièrement l'influence des conditions expérimentales sur la résolution.

Etant donné que l'expérimentateur ne peut jouer que sur 3 ou 4 films et sur les conditions expérimentales, il convient d'étudier avec soins celles-ci.

INFLUENCE de l'EXPOSITION :

BOYD montra, à la suite de nombreux essais que la résolution décroît lorsque le temps d'exposition croît. On explique l'accroissement du diamètre de l'image avec le temps par le fait que le pourcentage des beta de grandes énergies étant faible, ceux-ci n'ont pas le temps d'agir dans une exposition de courte durée, alors que si le temps augmente leur influence n'est plus négligeable.

Pour les émulsions nucléaires peu épaisses, STEVENS montra que la courbe de résolution, en fonction du temps d'exposition, passait par un Maximum.

En résumé, nous pouvons dire qu'une courte exposition fait apparaître les détails de distribution et une longue exposition est nécessaire pour les points peu radioactifs.

INFLUENCE DU DEVELOPPEMENT :

Les grains grossissent au cours du développement et cela fait décroître la résolution ; il convient donc d'utiliser des révélateurs pas trop rapides.

Nous avons toujours employé les révélateurs type "Radio" KODAK.

INFLUENCE DES QUALITES DU FILM :

La Résolution, c'est-à-dire la richesse de détails, dépend étroitement de la grosseur des grains, pour prendre certaines autoradiographies à l'échelle d'une cellule sanguine par exemple, nous devrons utiliser une émulsion nucléaire et poser quelques dizaines d'heures pour compenser le manque de rapidité, l'emploi d'un film RÉGULIX étant impensable dans un tel cas pour la simple raison que le grain d'émulsion est plus gros que la cellule elle-même.

Pour montrer l'influence de l'épaisseur de l'émulsion et celle de l'interespace nous reproduirons le tableau dressé par NADLER à l'aide de cylindres de 40 µ de diamètre et de 5 ou 2 µ de haut. Il utilisait la même définition que DONIACH et PELC mais étant donné que le concept de résolution le plus couramment utilisé en autoradiographie est l'inverse de cette distance, nous donnerons les deux valeurs.

EPAISSEUR d'EMULSION (µ)	INTERESPACE (µ)	HAUTEUR du CYLINDRE (µ)	RESOLUTION définie par NADLER (µ)	RÉSOLUTION (inverse des valeurs précédentes)
5	0,1	2	5,0	0,20
5	0,1	5	6,0	0,16
5	0,5	5	6,4	0,15
10	0,1	5	8,0	0,12
20	0,1	5	9,0	0,11
35	0,1	5	10,2	0,09

CONCLUSION.-

Une émulsion étant 100 à 1.000 fois plus sensible aux beta qu'aux gamma, ce seront donc les émetteurs beta qui seront intéressants pour l'autoradiographie ; dans le cas d'un émetteur mixte comme le Sodium 24 nous pourrons dire que seul le beta intervient.

Nous venons de voir que la qualité d'une autoradiographie dépendait de nombreux paramètres interférant les uns avec les autres et souvent créant des effets qui s'opposent. Il est possible malgré cela de déterminer quelques règles pratiques.

- Pour les grands pouvoirs de résolution et les dimensions extrêmement petites il convient d'employer les émulsions nucléaires avec une épaisseur rendant le temps de pose compatible avec la vie moyenne de l'isotope.

- Dans les autres cas, suivant la richesse du specimen et la nature du rayonnement émis, nous choisirons une sensibilité convenable.

Il faut noter que lorsqu'on étudie pour la première fois un specimen, on effectue en général plusieurs autoradiographies avec deux ou trois films différents et avec des temps de pose variables. Cette méthode expérimentale permet de déterminer les meilleures conditions pour réaliser le cliché. Au bout d'un certain temps on arrive à trouver le cliché adéquat avec seulement deux films et deux ou trois temps de pose.

Le cas est un peu plus délicat lorsque le spécimen a été activé en pile car l'activité n'est connue qu'à 20 ou 30 % près et il se présente une gamme très étendue d'énergie.

Il faut signaler le calcul de MARINELLI et HULL qui donne de bons résultats et permet une détermination assez précise du temps de pose.

Ils appellent L la quantité de rayonnement heurtant l'unité de surface, ces rayonnements provenant de la décroissance radioactive d'un corps qui a l'activité Ao au début de l'exposition et l'activité A_t au bout du temps t d'exposition.

Ao et A_t sont exprimés en microcurie par centimètre carré

L est " " "

d'où $L = A_o - A_t$

et comme $A_t = A_o \, e^{-\lambda t}$

on a $L = A_o \, (1 - e^{-\lambda t})$

en remplaçant $\lambda = \frac{0,693}{T}$

nous avons $t = \frac{T}{0,693} \quad \text{Log} \frac{Ao}{A_o - L}$

L ayant été déterminé en fonction du film choisi, grâce à ces équations, il a été dressé des tables donnant le temps t en fonction de l'isotope, de son activité et du film choisi.

ANALYSE DES RESULTATS.-

CAS d'un EMETTEUR :

La densité de noircissement étant liée à la quantité de rayonnement, nous pourrons procéder à une analyse quantitative. L'avantage primordial de cette analyse est qu'elle est ponctuelle. Nous pouvons, par simple vue du film, déduire l'homogénéité ou au contraire les imperfections de la source. Cette méthode très simple n'est pas toujours suffisante notamment dans le cas où les différences de densité de noircissement sont très faibles. Il faut alors remplacer l'oeil humain par la cellule photoélectrique d'un densitomètre. Nous procédons à des relevés microphotométriques : à l'aide d'un photomètre enregistreur nous parcourons le film suivant des droites équidistantes.

Le tracé du photomètre nous restitue de façon simple les densités suivant les deux dimensions du film.

CAS de PLUSIEURS EMETTEURS :

Nous pouvons sélectionner un émetteur parmi plusieurs à condition que les périodes soient assez différentes.

En jouant sur le temps d'irradiation, Le temps après sortie du réacteur nucléaire et la durée de la pose nous avons réussi à séparer le Dysprosium 165 de 2,35 heures du Sodium 24 de 15 heures et le Samarium 153 de 47 heures de ce même Sodium.

Une fois un émetteur sélectionné, nous pouvons tirer des conclusions à peu près identiques aux précédentes pour la densité.

[illegible]

I - [illegible]

Nous voulons, à l'aide d'une source beta procéder à l'analyse de structure interne de papiers fins. Cette méthode, très employée avec des Rayons gamma ou les Rayons X, nous a semblé intéressante. Une pareille étude avait été faite sur des papiers de condensateurs à l'aide d'une source de Nickel 63 afin de localiser d'éventuels points de claquage dus à des impuretés métalliques.

La première difficulté en bétagraphie provient de la source, il faut qu'elle soit :

- homogène,
- d'une surface assez grande,
- émettrice de Rayons beta assez énergétiques.

Le Nickel 63 de 125 ans de période avait permis à M. GODAR (Euratom) de réaliser de grandes sources par électrodéposition. Après plusieurs essais il réalisa des sources homogènes Nous avons utilisé celles-ci ; malheureusement l'énergie des beta : 0,067 M.e.V. était trop faible vu le grammage du papier.

Nous procédons à plusieurs expériences en employant une source de Thallium 204 (T = 3,9 années) de 8 millicuries ; ce corps émet un rayon de 0,76 M.e.V.

Cette source était prévue initialement pour l'élimination des charges électrostatiques en filature.

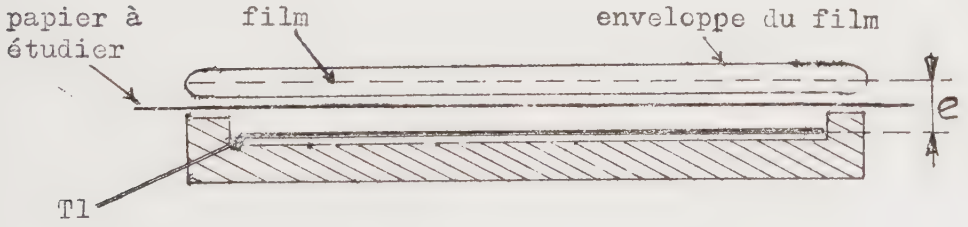
Nous employons deux types de films :

- KODIREX bicouche
- Type M

Sur ces films, 6 temps de pose différents furent utilisés afin de trouver le temps idéal et de vérifier les sensibilités relatives de ces deux films.

DISPOSITIF.-

Nous prenons une radiographie du papier intercalé entre la source et l'émulsion :



Nous avons vérifié l'homogénéité de la source en la photographiant sans intercaler le papier ; mais il faut noter qu'il reste toujours le papier enveloppant le film si l'on veut opérer en pleine lumière.

Pour éviter cet effet, nous avons opéré en pleine lumière avec le film enveloppé et en chambre noire par contact direct ; il n'y a pas de grosses différences, et la source n'est pas

Quand nous intercalons les papiers à étudier nous voyons apparaître des zones différentes suivant le rayonnage ; (nous avons en effet [illegible] et simplement une jauge d'épaisseur bois avec, seule modification, le remplacement du compteur par une émulsion photographique) mais du point de vue différence de [illegible] sur le même papier nous ne pouvons rien déceler de net ; il y a deux raisons à cela:

- l'interespace source - papier - film introduit un flou,
- le manque d'homogénéité de la source.

ETUDE DU FLOU.-

En radiographie le flou U est défini par la largeur réellement obtenue sur le film de l'image d'un bord.

Le flou en général dépend essentiellement:

1°) de la géométrie adoptée (Ug)

2°) de la qualité de l'ensemble : film - condition de développement (Uf)

3°) de l'émetteur choisi et notamment de son énergie (Ue)

Le flou total est donné par une formule du type "KLASENS"

$$U = U^2_g + U^2_f + U^2_e$$

En fait dans notre cas seul le flou géométrique dû à l'interespace est important et il est étroitement lié à l'homogénéité de l'émetteur.

Les distances émetteur-papier et papier film sont petites et du même ordre de grandeur.

Si la source était rigoureusement homogène le flux disparaîtrait totalement et nous aurions directement, en vraie grandeur, la radiographie du papier.

Une telle étude de bétagraphie pourrait donc être intéressante, mais il faudrait disposer de sources beta assez énergétiques (1 M.e.V.) et très homogènes. A ce sujet il convient de signaler que M. GODAR avait obtenu d'excellents résultats avec du ^{63}Ni au point de vue homogénéité.

Nous avons étudié les différents papiers suivants :

PAPIER 1 :
papier transfert avec du titane — 90 g/m^2

PAPIER 2 :
carton pour couleur — 200 g/m^2

PAPIER 3 :
demi-carton lisse — 135 g/m^2

PAPIER 4 :
demi-carton chamois lisse

PAPIER 5 :
Carton blanc lisse — 250 g/m^2

PAPIER 6 :
Carton chamois lisse — 250 g/m^2

PAPIER 7 :
papier ayant été éliminé du fait de traces de cuivre.

Avec une source beta assez homogène et d'énergie suffisante pour traverser le papier nous aurions obtenu la distribution massique du papier.

Une telle distribution peut être obtenue de façon beaucoup plus simple en se servant de la feuille de papier comme écran placé sur une émulsion photographique. Avec un flux lumineux assez important et par simple transparence nous avons, après inversion du cliché, une image de l'homogénéité du papier. Par comparaison avec les photographies représentant l'homogénéité des colles et adjuvants il sera possible de vérifier si la distribution de ces derniers est massique, c'est-à-dire si le rapport colle-papier est constant.

II - ACTIVATION DES COLLES.

Les différents adjuvants du papier sont placés dans des tubes de polythène, puis irradiés dans les réacteurs nucléaires. Suivant l'activité à la sortie du réacteur on utilise ou non un chateau de plomb pour le transport.

Avant de procéder aux analyses beta et gamma il faut enlever le polythène à cause de l'activité parasite de celui-ci, comme cela était décrit lors du dosage du Sodium dans la Gélatine au chapitre de l'analyse par activation. En effectuant les analyses à des temps différents, il est possible d'étudier les périodes. Pour prévenir le cas où une période longue en masquerait une plus courte il est bon d'utiliser plusieurs temps d'irradiation, en général 3 ou 4 pour chaque échantillon.

D'après la hauteur des pics et en utilisant la formule de l'activation, on peut effectuer un dosage semi-quantitatif.

Cette étude a pour but de connaître si les colles s'activent lors de leur passage en réacteur et, si elles comportent des impuretés, de quelles impuretés il s'agit et en quelle proportion. Nous ne voulons pas une analyse exacte des constituants mais seulement trouver des traceurs utilisables. Pour cette raison, par exemple, les émetteurs de périodes courtes ou ceux se trouvant en quantité trop faible ne sont étudiés que sommairement.

COLLE V.M.S. 12.-

Il s'agit de colophane avec de la paraffine. Cette colle constitue environ 25 % du total de matière sèche. On ajoute la paraffine à un mélange de colophane, de caséïne et de carbonate de Sodium.

La colophane est constituée de chaines hydrocarbonées plus ou moins longues. Le carbone et l'hodrogène ne s'activant pas de façon décelable avec des neutrons, il n'apparaîtra aucun atome donnant lieu à décomposition radioactive. Les seuls effets pouvant se produire seront des coupures de chaines par radiolyse ; l'action de cette radiolyse sera d'ailleurs étudiée au paragraphe suivant.

La Caséïne est la protéïne contenue dans le lait des différents animaux. Les protéïnes sont des composés azotés d'une constitution complexe ; elles contiennent en règle générale 50 % de carbone et 17 à 18 % d'azote et comportent des groupements COOH et NH_2. Pour les propriétés colloïdales on considère les protéïnes comme l'union de groupes : $H_2N - R - COOH$; le degré de polymérisation, qui s'effectue grâce à la combinaison amine et acide, varie avec les conditions et notamment avec le pH.

La Paraffine est un mélange de molécules à chaînes hydrocarbonées saturées, de poids moléculaire plus ou moins élevé.

Ces trois corps organiques ne possédant que des atomes de C, N, H, O, ne peuvent pas servir de traceur Intrinsèque, heureusement, le quatrième constituant qui est le carbonate de Sodium s'active très bien.

$Na_2 CO_3$

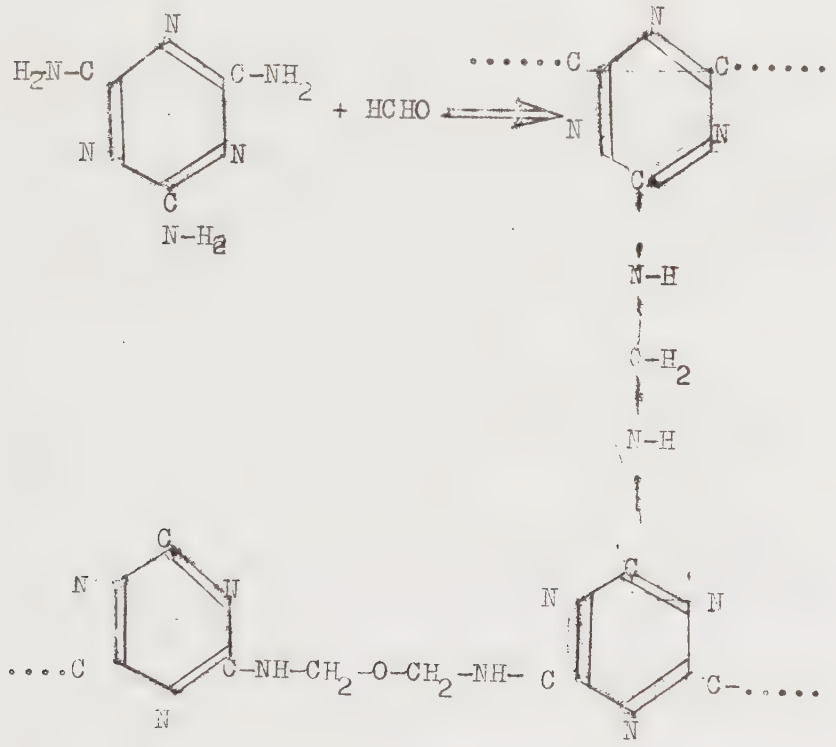
Ce corps très simple sert de cible à la préparation du Sodium 24 et il n'y a que ce radioélément qui se forme.

Si la colle reste inactive pour ses composés organiques, grâce au Sodium, nous aurons un bon traceur. A la sortie de réacteur, nous avons pu mettre en évidence ce traceur. A l'aide du spectrographe multicanaux nous avons tracé le spectre caractéristique. De même les courbes d'absorption beta et de décroissance ont confirmé la présence du Sodium 24, ces deux derniers tracés illustrent les méthodes d'analyse beta dans la première partie.

La préparation de l'émulsion de colle nécessite 6 heures de préparation avant d'être utilisable.

MELAMINE - FORMOL.

La mélamine, possédant trois groupes aminés, est capable de réagir sur le formol en donnant des composés macromoléculaires tridimentionnels.



On effectue le mélange mélamine-formol et l'on fait une dissolution en milieu chlorhydrique.

La fixation du formol conduit à un dérivé trimethylolé qui se condense sur lui-même en présence de Cl H avec élimination d'eau par intermédiaire de ponts méthylène - CH_2 - et de ponts éther - CH_2 - O - CH_2

Il faut environ 8 heures pour préparer et laisser polymériser la mélamine, et la concentration de cette colle est de 5 % par rapport au total de matières sèches.

Là aussi, nous retrouvons la présence de Sodium. Si les quantités sont plus faibles que précédemment, nous avons quand même un traceur du deuxième ordre parfaitement valable.

A l Cl_3

Il sert à provoquer la floculation de l'émulsion de colle sur les fibres. (Sa concentration est de 10 %). L'Aluminium donnera un radionuclide de période très courte, donc inutilisable et le chlore 36 de $3,1\ 10^5$ ans de période, et de 23 barns de section efficace sera indécelable après une irradiation de quelques jours.

FECULE

C'est un amidon de formule générale $(C_6\ H_{10}\ O_5)n$. On fabrique un empois et la concentration est de 1,6%. Ce corps organique ne peut s'activer que grâce aux impuretés qu'il contient. Nous avons décelé des traces de Sodium non négligeables.

La confection de l'empois nécessite 2 heures avant que celui-ci soit mélangé à la pâte.

GELATINE

A la base de cette protéïne se trouvent les amino-acides qui se groupent en longue chaines de polypeptides qui eux-mêmes se polymérisent.

Nous avons un corps complexe avec des groupements :

$$-\underset{\underset{OH}{|}}{C} = N\,H \qquad \text{ou} \qquad -\underset{\underset{O}{\|}}{C} - N=$$

La gélatine est introduite dans les presses encolleuses en solution de l'ordre de 10 %.

ALUN de CHROME

De formule $K\ Cr\ (S\ O_4)_2,\ 12\ H_2O$, Il sert à effectuer un tannage du papier et il est employé sous forme de solution à 0,6 %.

Après activation il apparait le pic caractéristique du Chrome 51. Celui-ci, de 27,8 jours de période et de 0,685 barn de section efficace, s'active assez bien pour donner un gamma à 325 k.e.V et un rayonnement de freinage interne à 750 k.e.V.

Le potassium 42 de période 12,5 heures et de $\sigma = 0,09$ barn apparait peu au spectrographe gamma car il émet 18 % de son rayonnement sous forme d'un gamma de 1,51 M.e.V. et une autre très faible partie sous forme d'un gamma de 320 k.e.V. Il émet également des beta :

18 % à 2,0 M.e.V.

82 % à 3,6 M.e.V.

KAOLIN

Il est introduit comme charge dans le papier. Sa formule générale est :

$$Al_2 O_3,\ 2\ Si\ O_2,\ 2\ H_2O$$

Le Silicium s'active pour donner le Silicium 31 qui émet un beta de 1,47 M.e.V. et un gamma de 1,26 M.e.V. Ce dernier représentant 0,07 % de son rayonnement.

Si le Silicium a une période courte de 2,64 heures permettant d'atteindre rapidement la saturation, il a une section efficace faible : 0,0034 barn et son activité spécifique à saturation pour un flux de 10^{12} n/cm^2.s n'est que de 2 mC alors que par exemple le Sodium 24 atteint dans les mêmes conditions 380 mC et de Dysprosium 79 Curies.

OXYDE DE TITANE

De formule TiO_2.

Par activation il apparait différentes impuretés dont certaines à période courte.

ETUDES DES RESULTATS

Comme il était facile de le prévoir les corps organiques restent inactifs et seules, leurs impuretés donnent lieu à décomposition radioactive après passage dans un réacteur nucléaire. C'est le cas notamment du Sodium que nous retrouvons toujours en quantité variable.

Ces impuretés nous fournissent des radiotraceurs du deuxième ordre très appréciables et comme il a été expliqué au chapitre des généralités il existe deux méthodes d'activation :

- Activation directe de la molécule organique et de ses impuretés,
- Activation d'une substance existant sous forme d'impureté dans le corps à tracer puis mélangé avec celui-ci.

Avant d'opter pour l'une ou l'autre méthode, il faut étudier l'incidence de l'irradiation en réacteur des différents composés.

EFFET DE L'IRRADIATION SUR LES COMPOSES -

Cette étude est intéressante car il est essentiel de savoir si les longues chaînes carbonées ne se coupent pas, ou s'il ne se produit pas des ruptures au sein même de la molécule de base par effet SZILARD. En effet si l'irradiation provoque de grands changements dans la matière irradiée, celle-ci sera différente au point de vue chimique et physique du corps que l'on désire étudier et notre substance radioactive se comportera comme un corps ayant des propriétés propres et non plus comme un traceur.

1- EFFET SZILARD - CHALMERS :

Dans le cas d'une réaction (n, γ) (par exemple Cr 51 et Cu 64) il se produit un recul du noyau au moment de l'émission gamma. Ce recul peut se produire avec une énergie suffisante pour briser la liaison qui l'unit à la molécule. Cet atome libre, chimiquement très actif, peut se recombiner à l'autre fragment moléculaire ou donner formation de nouvelles molécules différentes des précédentes, auquel cas le comportement physico-chimique peut être différent de celui de la molécule initiale ; ce phénomène est d'autant plus grave que ces nouvelles molécules sont "sans entraîneur".

2- DECOMPOSITION DE COMPOSES ORGANIQUES & MINERAUX :

L'étude de coupure de chaînes ou de décomposition nécessite un matériel et des soins très particuliers ; il ne pouvait être question au cours de notre étude de faire nous-mêmes de telles expériences. Nous avons consulté différents travaux effectués sur un tel sujet et notamment ceux des Anglais TAYLOR et ROGERS.

C'est à la suite de l'accident de WINDSCALE (incendie d'une pile au graphite) que l'UNITED KINGDOM ATOMIC ENERGY AUTHORITY chargea ces deux chercheurs d'étudier la décomposition de nombreux corps irradiés de façon courante pour la production de Radioisotopes.

Ils conduisirent cette étude avec toute la minutie et le soin nécessaires de façon à éviter, si cette décomposition était une cause de l'accident, le retour de tels faits.

Ils étudièrent tout particulièrement le volume et la nature des composés gazeux émis lors de la décomposition de solution aqueuse et de corps solides.

Toutes les irradiations eurent lieu dans des ampoules de silice, résistantes à une préssion moyenne, englobées dans des tubes d'Aluminium. Les échantillons étaient de l'ordre de 5 g pour les composés minéraux et seulement 1 g pour les organiques du fait de la plus grande décomposition de ceux-ci, particulièrement des corps possédant une chaîne aliphatique. Les échantillons en phase gazeuse utilisèrent de l'eau bidistillée sur quartz.

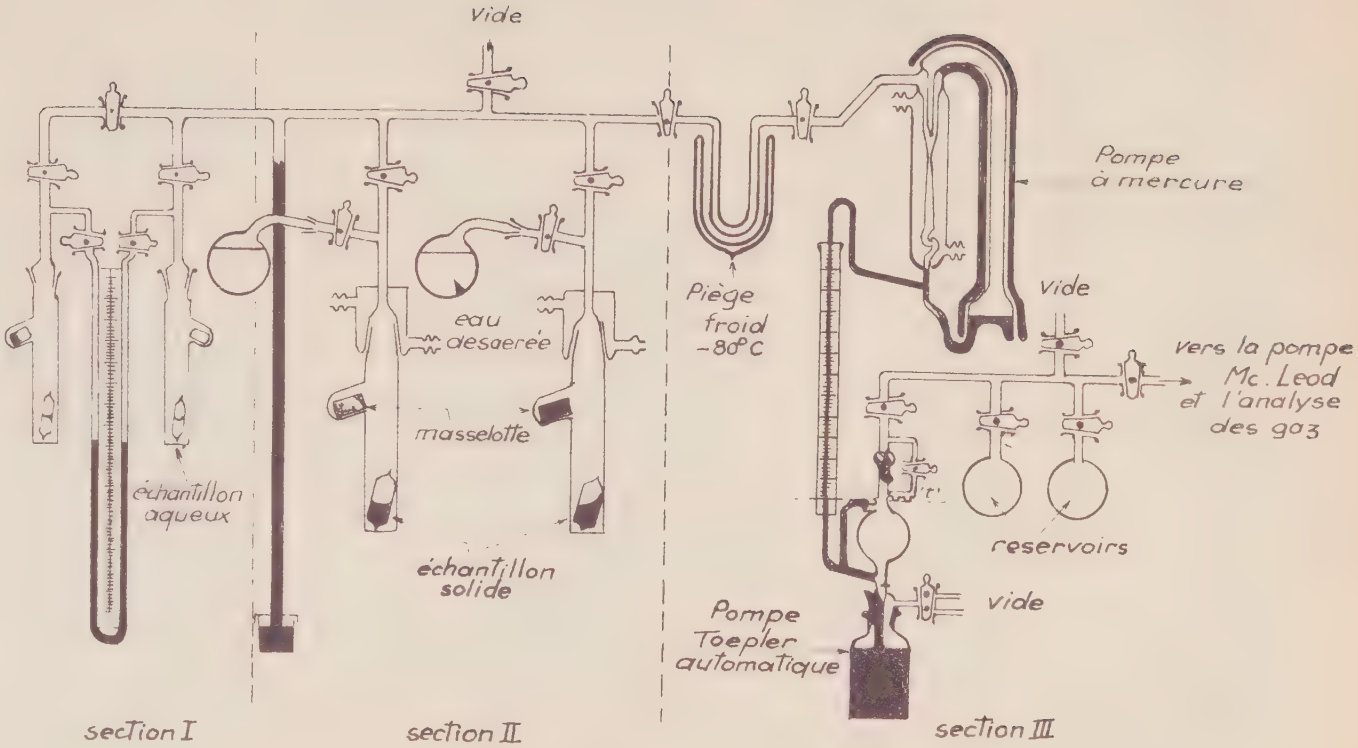
DESCRIPTION DES APPAREILS

On mesure la différence de pression entre l'échantillon irradié et un échantillon témoin, puis on transfère le gaz irradié dans un autre compartiment à des fins d'analyse.

La section I sert aux mesures des solutions aqueuses alors que la section II sert aux composés organiques et minéraux.

Les ampoules sont cassées à l'aide d'une masselotte métallique que l'on extrait d'un logement supérieur à l'aide d'un aimant et que l'on laisse choir sur l'ampoule.

La section III est constituée d'une pompe à mercure couplée à une pompe automatique de TOEPLER qui permet de mesurer le volume à $\pm$ 0,01cm^3 pour les plus petits volumes (de l'ordre de 0,05 cm3) on utilise une jauge de MAC LEOD). On procède ensuite à une analyse du gaz à l'aide d'un spectrographe de masse.



Mesure du volume des produits de décomposition -

R E S U L T A T S

Seuls les corps nous intéressant directement sont notés ici bien que l'étude des Anglais soit portée sur soixante composés environ.

LES CARBONTATES:

Il y a un volume négligeable de gaz produit pour les carbonates anhydres de Sodium, de Potassium et de Strentium ; on peut raisonnablement étendre ces résultats aux autres alcalins et alcalino-terreux. Une remarque intéressante a été faite dans le cas de

$$Na_2\ CO_3 - 10\ H_2\ O$$

irradié pendant 24 heures ou 144 h. ; après irradiation l'échantillon de 144 h. était liquide et apparemment il s'était dissout dans son eau de cristallisation à température de la pile. L'analyse du gaz montra de l'hydrogène et de l'oxygène dans le rapport 2/1 ce qui confirme la décomposition de l'eau par irradiation. Cette décomposition se retrouvera dans l'irradiation d'autres hydrates tels que :

$$Cu\ S\ O_4 - 5\ H_2\ O \quad ; \quad Z_4\ S\ O_4 - 7\ H_2\ O$$

$$K_4\ (CN)_6 - 3\ H_2\ O,\ etc...$$

	TEMPS d'irradiation en heure	FACTEUR de la PILE		GAZ Total cm 3	GAZ cm^3/g
		Neutrons rapides x10"n/cm^2s	Neutrons lents x10"n/cm^2s		
Na_2CO_3	150	0,29	8,60	2,91	0,50
Na_2CO_3-$10H_2O$	24	0,50	9,82	2,78	0,56
"	144	0,44	4,67	22,87	4,55
"	144	0,50	4,39	22,77	4,53
2 CO_3	144	0,46	4,26	1,06	0,21

CAS des CHROMATES

Dans le cas des chromates de Potassium utilisé pour la préparation du ^{51}Cr en accord avec HARBOTTLE et MADDOCK, nous ne trouvons pas de décomposition pour une irradiation de 6 semaines avec un flux de 3,5 10^{11} n/cm^2.s.

CAS DES SULPHATES

L'ion SO_4 a une très grande stabilité et l'on trouve seulement une décomposition de l'eau dans le cas de $Na_2 SO_4 - 10 H_2 O$ qui est partiellement liquide à température de pile.

COMPOSES ORGANIQUES

Une investigation systématique de la radiolyse des composés organiques n'a pas été réalisée mais de nombreux corps ont été étudiés.

	TEMPS d'irradiation en heure	FACTEUR de PILE		Cm^3 de GAZ par g
		NEUTRONS rapides x10"n/cm2s	NEUTRONS lents x10"n/cm2s	
CASEINE (A)	24	0,79	7,52	1,42
CASEINE (B)	24	0,87	7,56	2,14

Analyse au Spectrographe de masse

	H_2	CH_4	C_2H_4	C_2H_6	CO	O_2	A	CO_2
CASEINE (A)	38,3	2,15		0,14	16,5	0,04		42,9
CASEINE (B)	38,7	1,85	0,14		17,8	0,2	0,01	41,6

C O N C L U S I O N -

CHOIX de la MISE en OEUVRE des TRACEURS du DEUXIEME ORDRE :

A la lumière de ces résultats il apparait que la deuxième méthode de marquage des impuretés est la seule applicable pour les composés organiques. Ses avantages sont évidents : irradiation d'une faible quantité de matière et pas d'influence de l'irradiation si on utilise une substance minérale comme le carbonate de Sodium.

Il faut aussi en connaître les servitudes :

- Nécessité de vérifier que la quantité ajoutée n'est pas prépondérante par rapport au poids total d'impuretés afin déeviter de fausser les résultats.

- S'assurer que la répartition du radiotraceur est la même que l'impureté. On peut s'assurer de l'homogénéité du mélange en effectuant différents prélèvements et en les comptant aussitôt au compteur-puits au au compteur GEIGER-MULLER à fenêtre mince. Ce n'est que lorsque l'on aura, aux précisions près de l'appareil, le même nombre de coups que l'on pourra considérer le mélange comme homogène.

III - ACTIVATION DU PAPIER FINI -

Nous connaissons maintenant les différents constituants du papier ; nous pouvons donc prévoir les corps qui s'activent par irradiation en réacteur nucléaire.

Le Sodium provenant du carbonate de la colle auquel s'ajoute, en quantité tellement faible que nous la négligerons, le Sodium des impuretés :

Le potassium et le chrome de l'Alun

Le silicium du Kaolin.

CORPS	PERIODE	SECTION efficace (barn)	SATURATION flux de 10^{12}n/cm^{2}s.	RAYONNEMENT (M.e.V)	
			β	γ
^{24}Na	15h	0,54	380 mC/g	1,39 100% 4,17 0,003%	1,37 100% 2,76 100%
^{42}K	12,5h	0,09	37 mC/g	2,0 18% 3,6 82%	0,32 très faible 1,51 18%
^{31}Si	2,64h	0,0034	1,9 mC/g	1,47	1,26 0,07%
^{51}Cr	27,8j	0,685	213 mC/g		0,325 9% Rayonnement de freinage interne 0,75

Si nous irradions le papier pendant 15 h. (soit une période pour le Sodium) à un flux de 10^{12} nous obtiendrons :

190	mC/g	de	^{24}Na
20	mC/g	de	^{42}K
2,4	mC/g	de	^{51}Cr
1,9	mC/g	de	^{31}Si

Le Sodium aura donc une activité prépondérante aussi bien en émission gamma pour le spectrographe qu'en émission beta pour les autoradiographies.

Notamment dans ce dernier cas, l'autoradiographie représentera la distribution du Carbonate de Sodium avec une erreur assez faible car les énergies des différents beta sont du même ordre de grandeur. En se reportant au graphique de sensibilité des films en fonction de l'énergie, nous voyons qu'il en serait tout autrement s'il y avait un émetteur beta de 300 k.e.V auquel l'émulsion est 1,5 fois plus sensible qu'à l'action du rayonnement beta d'un émetteur d'énergie caractéristique 1,4 M.e.V.

Cette méthode d'activation du papier fini est donc une méthode de "traceur à postériori" Comme le carbonate fait partie de la colle nous avons un moyen rapide de localisation de celle-ci.

Le tannage à l'alun de chrome n'est pas toujours nécessaire et cette méthode de traceur s'améliore en l'absence de potassium et de chrome.

Les différentes irradiations eurent lieu à $E.L_3$ avec un flux de 10 à 30 minutes et à $E.L_2$ avec un flux de 2,4 10^{12} $n/cm^2.s.$ pour des temps variant de plusieurs heures à plusieurs jours.

A la sortie de pile il est préférable de laisser décroître durant une ou deux heures les périodes courtes. Nous utilisons des films REGULIX KODIREX, DEFINIX, et type M. Du fait de la grosseur des grains nous renonçons à l'emploi des deux premiers films. Pour avoir un noircissement utilisable il faut compter en moyenne 10^7 beta/cm^2 pour le DEFINIX et 10^8 beta/cm^2 pour le type M. Dans le cas d'un émetteur d'un seul beta les 10^8 beta/cm^2 peuvent être obtenus indifféremment par une faible activité et un temps de contact important ou une activité forte et un temps faible. Dans le cas d'un émetteur de plusieurs beta on a intérêt à avoir un temps de pose faible car la résolution augmente comme cela a été expliqué dans la première partie.

VALIDITE du TRACEUR :

Le premier problème à résoudre pour connaître la validité d'un traceur est de savoir si l'autoradiographie est l'image de la surface en contact ou l'image de tout le papier, en d'autres termes mesure-t-on la répartition à la surfade ou dans la masse du corps étudié. Il faut donc étudier l'absorption des beta par le corps en question pour savoir si un beta émis par un atome situé à l'intérieur de la substance atteint le film et dans quelles conditions.

ABSORPTION des BETA :

Nous faisons une étude assez générale du phénomène car, si le cas du Sodium est simple, nous aurons à résoudre le même problème dans des cas plus complexes notamment celui des traceurs à faible énergie beta.

Quand un flux traverse un matériau, le nombre de particules du rayonnement primaire décroît exponentiellement avec l'épaisseur d'absorbant

$$N = No\ e^{-\mu x}$$

où μ est le coefficient d'absorption totale.

Dans le cas des gamma et des Rayons X nous avons :

$$\mu = \tau + K + \sigma$$

ou τ et K sont respectivement les coëfficients d'absorption pour l'effet photoélectrique et pour la production de paires ; σ est appelé coëfficient total compton.

Plutôt que l'emploi de μ on préfère souvent utiliser "l'épaisseur moitié" (a) qui est l'épaisseur réduisant de 50 % le flux initial.

$$\frac{No}{2} = No\ e^{-\mu a}$$

$$\frac{1}{2} = e^{-\mu a}$$

d'où : $$N = No\ (\frac{1}{2})^{x/a}$$

D'après EVANS l'épaisseur moitié est donnée approximativement par la formule :

$$a = 0{,}032\ E^{1{,}33} \quad \text{en g/cm}^2$$

cela pour les énergies $E > 0{,}25$ M.e.V.

LIBBY et OVERMAN ont montré qu'une loi en puissance 3/2 était meilleure

$$a = 0{,}046\ E^{3/2}$$

Dans notre cas particulier il s'agit de connaître le pourcentage de beta absorbés avant le film. Comme l'absorbeur est la source elle-même nous sommes en présence d'un cas "d'autoabsorption".

Dans un tel cas, les radiations des noyaux les plus éloignés doivent traverser en partie la source avant d'émerger. L'activité apparente n est donc inférieure à l'activité vraie n_o .

En intégrant l'équation de l'absorption sur l'épaisseur de la source nous avons :

$$n = \frac{n_o}{x} \int_o^x \left(\frac{1}{2}\right)^{x/a} dx$$

$$\frac{n}{no} = \frac{1 - (1/2)^{xa}}{0,693\ x/a}$$

dans le cas où $x \ll a$

$$\frac{n}{no} \simeq 1 - 0,346 \quad x/a$$

Si l'épaisseur de la source est supérieure à environ 1/10 de a il vaut mieux faire une correction expérimentale. Nous n'allons pas entrer dans le détail de cette technique décrite par WHITEHOUSE et PUTMAN, nous allons seulement rappeler les résultats les plus significatifs.

Quand l'épaisseur est importante, les couches inférieures ne participent pas au rayonnement de surface puisque leurs radiations sont entièrement absorbées ; pour ces raisons une source qui est plus épaisse que l'épaisseur d'arrêt est appelée "source infiniment épaisse".

Si S est l'activité spécifique en curie par mg

a est l'épaisseur moitié en mg/cm^2

n est l'activité apparente

$$n = \mathcal{S}\ A \int_o^{\infty} \left(\frac{1}{2}\right)^{x/a} dx$$

$$n = 1,44\ \mathcal{S}\ A\ a$$

en d'autres termes l'épaisseur effective de la source est : 1,44 a.

CAS du SODIUM :

En appliquant la formule de LIBBY et OVERMAN :

$$a = 0{,}046\ E^{3/2} \qquad \text{avec } E_{\beta Max} = 1{,}39$$

nous avons $a = 0{,}046 \times 1{,}39^{3/2}$

$$= 75.\ 10^{-3}\ g/cm$$

$$\underline{a = 75\ mg/cm^2}$$

le papier pesait 200 g/m^2 soit 20 mg/cm^2

avec l'équation exacte de l'intégration

$$\frac{n}{no} = \frac{1 - (1/2)^{x/a}}{0{,}693\ x/a}$$

le rapport $\frac{n}{no}$ est : $\frac{1 - 0{,}83}{0{,}693 \times \frac{20}{75}} = 0{,}91$

ou avec les simplifications si $x \ll a$

$$\frac{n}{no} \simeq 1 - 0{,}346^{\,x/a}$$

$$" \simeq 1 - 0{,}092 = 0{,}918$$

Le film reçoit donc environ 90% de l'activité totale ce qui montre que l'effet d'écran est faible. La couche la plus éloignée du film située à 20 mg/cm^2 voit son rayonnement traverser le reste du papier dans le rapport :

$$\frac{n}{no} = \left(\frac{1}{2}\right)^{x/a} = \left(\frac{1}{2}\right)^{20/75}$$

$$= 0{,}83$$

soit : $\underline{83\ \%}$

Le film photographique enregistrera donc la répartition dans la masse avec une erreur très petite et le Sodium peut être regardé comme un bon traceur de la colle.

IV - EXPERIENCES REALISEES EN USINE -

A) CHOIX DU TRACEUR.-

1°) PERIODE :

Le cas particulier d'utilisation de traceurs radioactifs dans une Usine de papiers photographiques, rejettant ses effluents dans une rivière utilisée par des Usines concurrentes du même genre, impose des restrictions.

Si on utilise des traceurs du premier ou du deuxième ordre dans la fabrication en Usine seuls les isotopes à période courte seront utilisables. Il faut éviter la contamination de la rivière et la période devra être environ 1/5 du temps de séjour des eaux usées dans les bassins de décantation. D'autre part, vu la complexité d'une machine à papier, avec ses cylindres très nombreux, ses feutres presseurs ce qui rend toute décontamination à peu près impossible. Nous devons utiliser des périodes courtes pour que la machine puisse être arrêtée durant la décroissance afin d'éviter :

- la fabrication de papiers comportant des sources de rayonnement incompatibles avec un papier photographique,
- l'irradiation prolongée et la contamination du personnel souvent non averti.

Cependant la période ne saurait être trop courte, il faut en effet prévoir un temps mort important entre le détournement du radioélément et l'arrivée de celui-ci à l'Usine ; de même la mise en oeuvre du traceur dans la colle peut nécessiter plusieurs heures : dans le cas de la mélamine, il faut 8 heures pour atteindre un degré de polymérisation suffisante, auxquelles s'ajoute le temps de fabrication du papier.

On peut schématiser le temps t' comme la somme

$$t' = t_v + t_m + t_f + t_c$$

avec t_v = durée du transport du réacteur à l'usine - temps de détournement compris -

t_m = temps de mélange ou d'élaboration du produit marqué

t_f = temps de fabrication

t_c = temps s'écoulant entre la fin de fabrication et la mesure au compteur ou la mise en contact avec l'émulsion photographique.

Un radioélément de période t' ou t'/2 convient bien en général. Si la période était bien inférieure à t' il faudrait une forte activité à la sortie du réacteur et surtout il faudrait assurer en toute sécurité le transport de cette activité. Des réglements strictes conditionnent le transport de matières radioactives et les risques d'accidents durant ce transport ne doivent pas être négligés.

En conclusion, le radioélément devra avoir une période de 5 à 20 heures et les expériences devront être faites de préférence en fin de semaine afin de permettre une décroissance durant les jours de fermeture.

CAS DES TRACEURS A "POSTERIORI" -

Ces considérations ne sont pas valables dans le cas du traceur "à postériori" qui a l'avantage primordial de ne pas nécessiter l'emploi de corps radioactifs lors de la fabrication.

Comme le papier possède déjà un tel traceur sous forme du carbonate de Sodium il faudra utiliser des émetteurs de périodes bien différentes de celle du Sodium si l'on veut marquer d'autres adjuvants que le $Na_2 CO_3$. On utilisera soit des périodes plus courtes soit des plus longues. Il est bon de prévoir un facteur 4 ou 5 entre ces périodes et celle de 15 h. du Sodium soit :

15/4 $\simeq$ 4 heures pour les périodes courtes

15 x 4 = 60 heures - longues

Dans les périodes courtes il faut éviter celles inférieures à 30 minutes car, 30 mn environ sont nécessaires pour défourner le papier, laisser décroître les périodes courtes parasites et effectuer le contact ou la mesure.

En résumé :

Traceurs directs : 5h T 20h.
Traceurs à postériori :
0,5h T 4h.
50h T

2°- NATURE DU RAYONNEMENT :

Le plus souvent on utilise les émetteurs gamma que l'on détecte au compteur GEIGER ou au scintillateur et les émetteurs beta detectés au GEIGER ou à l'aide de films. Les émetteurs alpha, très facilement absorbés ne sont employés que dans certaines expériences assez spéciales comme la localisation du Bore dans les aciers.

a - RAYONNEMENT GAMMA

Il a l'avantage d'être très pénétrant et donc de permettre l'analyse rigoureuse de la distribution dans la masse. Au cours de l'activation de papiers finis, si nous utilisons le rayonnement gamma du Sodium à la place du beta nous aurons une efficacité de 100 % au lieu de 90 %.

La technique couramment utilisée consiste à analyser des échantillons de la substance qui comporte le traceur radioactif, celui-ci étant un traceur direct ou à postériori.

Les échantillons peuvent être analysés à l'aide d'un spectrographe et l'on déduit la quantité de matière d'après la hauteur des pics, comme cela a été fait pour le dosage du Sodium dans la Célatine.

Une autre technique plus simple peut être employée dans le cas où il y a un seul émetteur, On effectue un simple comptage des échantillons placés rigoureusement dans la même géométrie et d'après le nombre de coups on en déduit l'homogénéité. Monsieur KUHN utilisa cette dernière technique dans l'étude du paraffinage en filature ; il utilisait comme traceur de la paraffine 10 mC de naphténate de Cobalt 60.

On appelle acides naphténiques les acides que l'on rencontre dans le pétrole brut et dans ses produits de distillation car ils distillent sans décomposition. Ils sont formés d'un mélange d'acides aliphatiques saturés $C_n H_{2n} O_2$, d'acides monocycliques saturés $C_n H_{2n-2} O_2$ et d'acides saturés bicycliques $C_n H_{2n-4} O_2$.

Les premiers n'existent qu'en petite quantité, les monocycliques contiennent 12 ou 14 carbones et les bicycliques plus de 12 carbones. Le Naphtenate de Cobalt est un produit assez courant, utilisé comme accélérateur de séchage pour les peintures et dans l'industrie du savon. Il se mélange facilement à la paraffine. Il y avait $1,7\ 10^{-3}$ mg de paraffine par cm de fil. La detection était effectuée sur des échantillons de 1,2 cm à l'aide d'un compteur à scintillation.

ERWALL étudia l'écoulement des fibres sur une machine à papier à l'aide d'iode 131, on mesurait l'activité d'échantillons prélevés à différents endroits, à l'aide d'un compteur GEIGER à fenêtre en bout. Le marquage avait lieu sur les fibres avec la technique suivante : les fibres sont malaxées pendant une heure dans une solution de nitrate d'argent à 0,5, la concentration des fibres étant d'environ 1 % ; après quoi la pâte est filtrée et les fibres dispersées dans une solution de Na Cl; le Chlorure d'Argent est complètement précipité : un traitement au désintégrateur et un lavage d'une heure enlèvent ensuite le Ag Cl mal fixé.

Le marquage final est réalisé par une solution alcaline d'iode 131 contenant de petites quantités d'entraîneur. L'échange Chlore - Iode a lieu et les fibres sont alors débarassées de tous les résidus de la solution ayant servi au marquage à l'aide d'un lavage.

L'Iode 131 de 8,04 jours de période émet de nombreux beta et gamma, il se forme par décomposition du tellure 131 :

$$^{131}Te \xrightarrow[25\ mn]{\beta -} {}^{131}I$$

Dans le "Journal of Textile INSTITUTE" nous trouvons une technique de marquage de la paraffine se dosant sur le même principe que KUHN ; mais à la place du naphténate de Cobalt on utilise la triphenyl stilbine de formule $Ar_3\ Sb$. Ce corps a un point de fusion bien déterminé ; la liaison C - Sb est assez solide pour que l'antimoine reste lié aux groupes phenyls dans les réactions courantes.

L'antimoine donne deux radioisotopes :

^{122}Sb de 2,74 jours de période

^{124}Sb de 60 jours -

qui émettent simultanément plusieurs beta et gamma.

CRITIQUES

Ces techniques ont l'avantage de permettre une analyse rapide et dans la masse ; par contre elles ont l'inconvénient de donner une analyse de la quantité totale du traceur dans l'échantillon et ne permettent donc pas une analyse fine ; elles nécessitent de plus un ensemble de comptage assez couteux, surtout quand on compare cette méthode avec l'autoradiographie. Il faut noter que la technique de l'autoradiographoe peut être utilisée avec des émetteurs gamma.

Le rendement étant 100 ou 1.000 fois plus faible qu'avec les beta il faudra de très fortes activités ou des temps de pose longs. On peut améliorer sensiblement ceci en utilisant des écrans renforçateurs au plomb du type "gammagraphique" qui multiplient ce rendement par 3 ou 4.

Dans le cas du Sodium, par exemple, si on utilise les gamma il faut tenir compte du facteur 3 ou 4 pour les écrans et du facteur 2 dû à l'émission de deux fois plus de gamma que de beta, soit au total un facteur 6 qui est loin de compenser le facteur 100 ou 1.000 favorable aux beta.

b - RAYONNEMENT BETA -

Il est absorbé assez rapidement bien que des émetteurs beta comme le Sodium avec 1,39M.e.V donnent des rayons de parcours maximal 600 mg/cm^2. L'effet de surface sera donc prépondérant pour les faibles énergies.

L'analyse du rayonnement beta peut être faite à l'aide d'un compteur GEIGER. Dans le cas de plusieurs émetteurs on tracera la courbe de décroissance et l'on pourra les séparer suivant leur période. Cette méthode nécessite un appareil beaucoup plus simple et bien moins onéreux qu'un spectrographe mais il faut échelonner les mesures sur plusieurs jours suivant les périodes. Comme dans le cas de l'analyse des gamma on effectue un dosage de la totalité du traceur dans l'échantillon et on ne peut pas distinguer des irrégularités locales. La meilleure technique pour déceler de telles irrégularités est l'autoradiographie. Suivant la finesse d'analyse

désirée nous choisissons un film à grain plus ou moins gros.

Le maximum de sensibilité d'un film se situant vers 200 - 300 k.e.V. des émetteurs de telles énergies seront très efficaces mais ils ne pourront être décelés que près de la surface.

Si E = 0,3 M e.V , l'épaisseur moitié est :

$$a = 0,046 \times 0,3^{3/2} \text{ g/cm}^2$$

$$a = 7,5 \text{ mg/cm}^2$$

soit 10 fois moins que le Sodium.

De tels émetteurs sont donc tout désignés pour l'étude du surfaçage.

SENSIBILITE des DOSAGES

Suivant leurs rayonnements et leur période les corps sont plus ou moins décelables par analyse beta ou gamma.

Monsieur LAVERLOCHERE a dressé par ordre décroissant un tableau représentant la sensibilité de dosage de 75 Corps.

Ce tableau, représenté page suivante, permettra de choisir des éléments facilement décelables.

SECURITE

Suivant la nature et l'énergie du rayonnement il faudra envisager différentes normes de sécurité.

Si le traceur peut être facilement isolé dans un chateau de Plomb il ne peut pas en être de même lors de la mise en oeuvre sur machine. La seule protection sera un écran de plomb devant les bacs contenant le traceur et pour le reste de la machine il faudra se tenir à une certaine distance ; dans le

10^{-11} à 10^{-10}	Europium	Dysprosium				
10^{-10} à 10^{-9}	Holmium	Indium	Iridium	Lutecium	Rhenium	Samarium
10^{-9} à 10^{-8}	Antimoine	Arsenic	Brome	Cuivre	Gallium	Iode
	Lanthane	Palladium	Praseodyme	Sodium	Tantale	Terbium
	Tungstene	Uranium	Vanadium	Ytterbium	Scandium	Or
	Manganese	Thalium				
10^{-8} à 10^{-7}	Aluminium	Barium	Cadmium	Coesium	Chlore	Cobalt
	Erbium	Gadolinium	Germanium	Hafnium	Osmium	Phosphore
	Potassium	Rubidium	Selenium	Thorium	Zine	Xenon
	Yttrium	Nickel	Platine	Krypton	Argon	
10^{-7} à 10^{-6}	Argent	Cerium	Chrome	Mercure	Molybdune	Néodyme
	Ruthenium	Strontium	Tellure	Thallium	Etain	Zirconium
10^{-6} à 10^{-5}	Bismuth	Calcium	Fer	Fluor	Magnesium	Silicium
	Soufre	Titane	Rhodium			
10^{-5} à 10^{-4}	Plomb	Niobium	Titane			

cas d'émetteurs beta purs une distance restreinte sera suffisante, pour les émetteurs gamma la pénétration est beaucoup plus grande.

TABLEAU des DOSES RECUES par une PERSONNE située à 1 metre de l'émetteur en milliRoentgen par heure et par millicurie

NUCLIDE	ENERGIE DES GAMMA (M.e.V)	DOSE MR h x mC
^{24} Na	1,37 2,75	1,92
^{52} Mn	0,73 0,94 1,46	1,93
^{60} Co	1,17 1,17 1,33	1,31
^{64} Cu	1,35	0,12
^{82} Br	0,547 0,608 0,692 0,766 0,823 1,031	1,5
^{131} I	0,08 0,28	0,24
^{198} Au	0,41 0,676	0,25

Le papier radioactif est très contaminant et il doit toujours être manipulé avec des gants.

Pour l'évacuation des eaux usées il faut vérifier que l'on ne dépasse pas la concentration Maximale autorisée (c.m.a.) pour des personnes non médicalement surveillées, c'est-à-dire 10 fois moins qu'un agent du C.E.A. - A la S.A.R. l'habitude est de prendre le 1/10 de la c.m.a. d'un agent du C.E.A. soumis quotidiennement aux radiations alors qu'une expérience ne contamine un endroit que durant les 5 ou 6 périodes du radioélément, et que la consommation reste épisodique. Cette attitude sera sans

doute assouplie par la suite et des c.m.a. spéciales seront calculées, tenant compte de la période du radio-élément et de la fréquence des expériences.

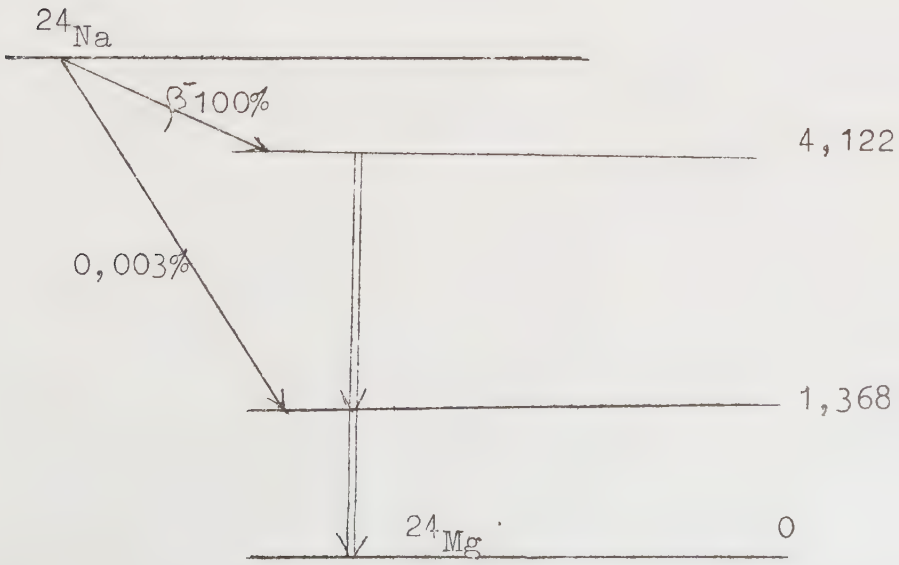
CONCLUSION -

Nous devons utiliser des traceurs directs et à postériori pour vérifier la concordance des résultats.

Traceur Direct :

Le Sodium est tout indiqué puisqu'il existe sous forme d'impureté dans tous les adjuvants Sa période de 15 h. permet une décroissance rapide et son rayon beta d'énergie Maximale de 1,39 M.e.V est très pénétrant. Il s'active rapidement en pile grâce à sa section efficace de 0,54 barn. Il a par contre l'inconvénient d'émettre deux gamma inutiles et dangereux qui amènent une dose de 1,92 $\frac{mR}{h \times mC}$ à 1 mètre.

SCHEMA de DECOMPOSITION
du SODIUM



Pour éviter les effets de l'irradiation en réacteur nucléaire le Sodium sera activé séparément sous forme de $Na_2 CO_3$ puis mélangé à la substance.

Traceur à posteriori :

Comme nous l'avons expliqué au chapitre précédent, le Sodium est lui-même traceur à postériori et il faut des corps de périodes :

$$0,5 \text{ h} < T < 4 \text{ h}$$

ou $$50 < T$$

Ils doivent être émetteurs beta, avoir une section efficace suffisante pour permettre une activation rapide et être analysés avec une grande sensibilité.

Nous avons choisi le Dysprosium 165 et le Samarium 153.

DYSPROSIUM 165

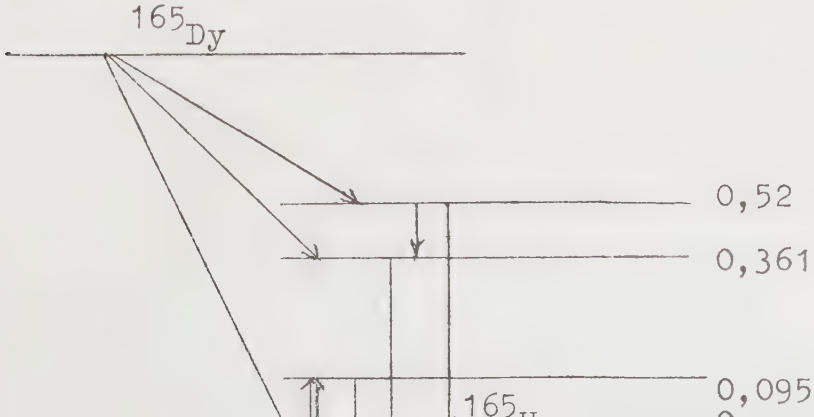
Période : 2,35 h

Section efficace : 790 Barns

Emetteur de rayon beta d'énergie Maximale:

0,42
0,88
1,25

Sensibilité de détection : 10^{-10} g pour un flux de 10^{12} $n/cm^2.s$



SAMARIUM 153

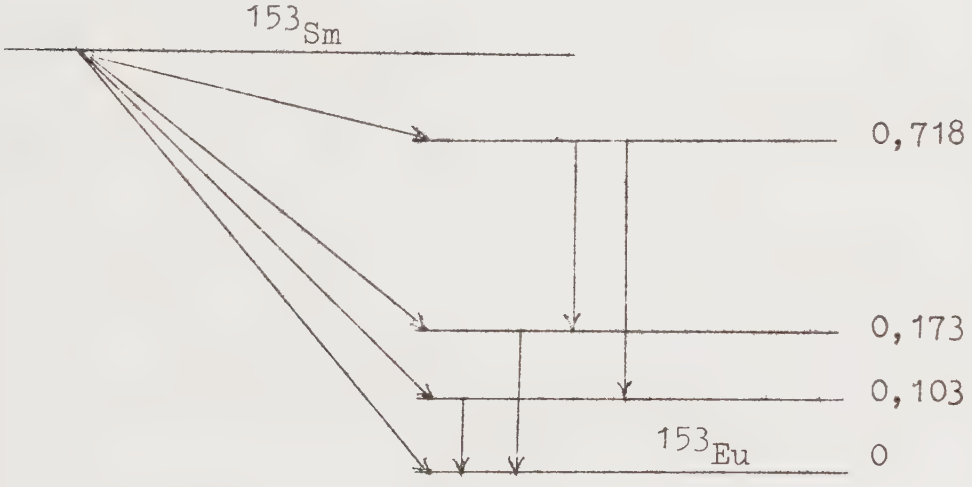
Période : 47 h

Section efficace : 37,2 b

Emetteur de rayons beta de :

0,13	0,06 %
0,65	40 %
0,72	38 %
0,83	22 %

Sensibilité de détection : 10^{-9} g pour un flux de 10^{12} n/cm^2.s



B - R E A L I S A T I O N S -

1°) ETUDE DE LA LOCALISATION ET DE LA PENETRATION DE LA GELATINE :

Cette première expérience ne fait intervenir le radioélément qu'en fin de machine ; toute la mise en route se fait avec du papier inactif et permet de mesurer les temps nécessaires aux différentes manipulations. Cette expérience nous sert de manipulation "à blanc" pour l'introduction ultérieure de colles marquées.

La machine est réglée pour un papier de 200 g/m^2.

Le bac de la presse encolleuse de gélatine a son volume ramené de 2,5 à 1 litre à l'aide de barres de verre, pour éviter une trop grosse dilution.

a) MESURE de la QUANTITE de GELATINE ABSORBEE par le PAPIER.

Nous procédons à une telle mesure pour connaître approximativement la concentration future du traceur dans le papier. Nous opérons par simple pesée.

150 cc d'une solution à 10 % de gélatine sont absorbés par 1 m^2 de papier.

Le papier comporte $\simeq$ 15 g/m^2 de gélatine.

b) TRACEUR du DEUXIEME ORDRE : ^{24} Na.

Ce traceur est choisi, car il existe déjà sous forme d'impureté dans la gélatine. Pour éviter les effets d'irradiation de la gélatine on opère par mélange de carbonate de Sodium actif à de la gélatine.

On irradie 60,5 mg de $Na_2 CO_3$ en solution soit :

$$\frac{60,5 \times 46}{106} = 26,3 \text{ mg de Na}$$

La gélatine contient 0,061 % de Na soit pour un litre de solution à 10 %, 61 mg de Na.

Nous additionnons une quantité moitié de celle qui existe déjà ce qui ne peut pas perturber le cheminement de la gélatine.

L'irradiation a lieu au canal pneumatique de MELUSINE.

- Flux : $4,7\ 10^{12}$ n/cm^2. s
- Durée : 30 mn

= ACTIVITE :

$$A\ C/g = \frac{0,6}{3,7\ 1010} \times \frac{4,7\ 10^{12} \times 0,52}{23} \left(1-e^{0,693 \times \frac{0,5}{15}}\right)$$

$$= 0,\ 0\ 4$$

pour 26,3 mg de Na

$$A = 0,04 \times 26,3 \times 10^{-3}\ C$$

$$\underline{A = 1\ mC}$$

= SECURITE :

1 mC de ^{24}Na donne 1,92 mR/h à 1 mètre

soit à 10 cm $1,92 \left(\times \frac{1}{10}\right)^2 \simeq 200$ mR/h

On vérifie ceci à la sortie de pile, à l'aide d'un radiamètre. Le transport s'effectue au moyen d'un chateau de plomb de 50 mm d'épaisseur, ce qui réduit la dose à 20 mR/h au contact. La dose Maximale autorisée étant de 200 mR/h au contact nous sommes largement dans les normes de sécurité.

= MISE EN OEUVRE :

Par suite de la température extérieure très basse, les canalisations d'eau sont gelées et il faut attendre pour commencer l'expérience. Il s'écoule ainsi 6h30 après le défournement. Vu l'activité du carbonate, on effectue le mélange gélatine/carbonate à 50 cm de distance avec quelques opérations à 10 cm.

Dans le cas de grosses activités, il aurait fallu prévoir un dispositif d'injection qui permette à la solution radioactive de passer directement du chateau de plomb dans le bac encolleur. Après passage de quelques mètres de papier on vide la gélatine radioactive dans un bac auquel sont jointes les eaux de rinçage. Le tout est mis en sécurité loin du personnel.

Pour éviter l'irradiation inutile et l'effet psychologique toujours important seules deux personnes entourent la machine et l'accès du laboratoire est interdit au reste du personnel. Un stylo dosimètre placé au poignet le plus exposé enregistre durant toute l'expérience 8 mR.

= AUTORADIOGRAPHIES :

- Mise en contact de films DEFINIX type M { 7 h. après défournement

- On coule une émulsion photographique au bromure directement sur le papier. La sensibilité de cette émulsion est intermédiaire entre celle du Type M et celle d'une émulsion nucléaire. Elle a l'avantage d'offrir un contact parfait.

Le développement des différents films a lieu au bout de 1, 3 et 9 périodes, soit : 15 h, 45 h, et 135 h.

Le film du type DEFINIX a noirci au bout de trois périodes ; les deux autres ne sont pas assez impressionnés. Calculons le nombre de particules beta émises dans le cas du temps de pose de 9 périodes.

L'activité du 1 mC au défournement correspond à environ : 0,75 mC/litre au moment du contact, soit après 1/2 période.

Le papier absorbe 150 cc au m^2, soit :

$$\frac{0,75 \times 150}{1.000} \times 10^{-4} = 110 \quad 10^{-7} \text{ mC/cm}^2$$

En intégrant le nombre de particules beta émises durant 9 périodes, nous avons :

$$A_{total} = \frac{Ao \times T}{0,693} \simeq \text{Nombre de particules émises durant 9 périodes}$$

Avec $Ao = \frac{110.\ 10^{-7}}{3} \times 3,7.\ 10^{7}$ car il y a émission de un beta

toutes les trois particules et 1 mC = $3,7.10^{7}$ particules/s

$$A_t \simeq \frac{110 \times 10^{-7}}{3} \times 3,7.\ 10^{7} \times \frac{15 \times 3.600}{0,693}$$

$$\simeq 9,5.\ 10^{6}$$

Il y a : 10^{7} rayons beta au cm^2

ce qui correspond bien au noircissement du DEFINIX.

c) TRACEURS à POSTERIORI :

Nous dissolvons 100 mg de $Dy_2 O_3$ dans une solution nitrique à 60°C et nous ajoutons cette solution à la gélatine en même temps que 2 cc d'une solution à 1 mg/cc de Samarium. Cette dernière inclusion nous permettra de vérifier la compatibilité des deux traceurs : Dy et Sm. Après un brassage prolongé nous réalisons 10 m de papier.

= IRRADIATION :

Il faut activer Dy sans que Na et Sm gênent l'analyse. Par suite de sa section efficace très grande et de sa période courte nous irradions 10 mn au flux assez faible de 2,4 10^{10} $n/cm^2.s$. L'activation a lieu dans"les canaux de chimiste" de $E.L_2$ qui nous permettent l'irradiation de grande surface de papier (100 cm^2).

Après un contact de 2 h sur film DEFINIX nous obtenons une autoradiographie de bonne qualité.

= DOSAGE de Dy :

Nous irradions 8 cm^2 de papier avec une solution témoin contenant 0,1 mg de Dy et nous procédons à une analyse quantitative à l'aide du spectrographe multicanaux. Il faut noter que la meilleure méthode d'analyse dans le cas de Dy qui est surtout un émetteur beta, est l'étude de la courbe de décroissance au compteur GEIGER. Un dosage approximatif étant suffisant nous prenons la première méthode beaucoup plus rapide.

	HAUTEUR des PICS	DUREE de STOCKAGE	SENSIBILITE de l'APPAREIL = Nbre de cas Max.
Tension	14 cm	2 mn	65 . 536
Papier	10 cm	10 mn	8 . 191

Pour 8 cm^2 il y a : $\frac{0,1 \times 10 \times 2 \times 8.191}{14 \times 10 \times 65.536} = 1,8.10^{-3}$ mg

soit : $\frac{1,8.10^{-3} \times 10^4}{8} = \underline{\underline{2,2 \text{ mg / } m^2}}$

Du fait de la durée d'irradiation et du flux seul le Dysprosium est devenu radioactif.

= ASPECT PARTICULIER DE Dy :

Avec des énergies Maximales beta assez faibles, Dy est sensible à l'auto-absorption ; l'autoradiographie réalisée avec ce traceur donne une importance prépondérante à la surface. Cet aspect nous a permis l'etude de la pénétration de la gélatine dans le papier.

La moitié d'un échantillon subit un "peluchage" ce qui permet d'éliminer la couche externe du papier. Le papier ainsi préparé est irradié puis autoradiographié.

Si l'encollage de gélatine n'a lieu qu'en surface, la moitié de l'autoradiographie sera vierge et si, par contre, il y a pénétration dans la masse nous aurons une densité uniforme. Cette étude par "tout ou rien" est la plus précise ; si nous utilisons un traceur avec des beta de grande énergie comme le Sodium 24 il n'en est plus tout à fait de même dans le cas d'une répartition massique ;

l'émulsion enregistre le rayonnement de tout le papier et non plus de la surface, nous aurons donc une densité plus faible à l'endroit du "peluchage" même si la répartition est homogène, cette différence provenant de la quantité de traceur situé dans la première couche.

2°) REPARTITION de la COLLE V.M.S. 12

Cette colle est un mélange de plusieurs constituants, notamment de carbonate de Sodium. Celui-ci sera un traceur intrinsèque très intéressant puisque nous savons déjà utiliser le Sodium 24. Nous pourrons comparer les résultats obtenus avec ce traceur du premier ordre et différents traceurs à posteriori toujours plus intéressants car ils évitent la manipulation de matières radioactive en Usine.

a) TRACEUR INTRINSEQUE : ^{24}Na

IRRADIATION

93,7 mg de $Na_2 CO_3$ sont mis dans le canal pneumatique de MELUSINE, soit 41 mg de Na.

Durée : 30 minutes

Flux : $4,7\ 10^{12}$ n/cm^2.s

Activité : A C/g = 0,04 d'après le calcul pour la gélatine.

$$A = 0,04 \times 41 \times 10^{-3}$$

$$A = 1,6 \text{ mC}$$

SECURITE -

à 1 mètre la dose est de 1,92 x 1,6 ≃ 3 mR/h

à 10 cm " 3 x $(10)^2$ = 300 mR/h

Le transport s'effectue dans le même chateau de Plomb que précédemment.

MISE EN OEUVRE -

La mise en oeuvre est beaucoup plus délicate que dans les expériences sur la gélatine.

Le carbonate est mélangé à la colle dans un récipient placé au dessus du cuvier. Celui-ci contient 2 Kg de pâte à papier dispersés dans 150 litres d'eau. La colle homogénéisée, est versée dans le cuvier et on réalise la floculation grâce à $Al\ Cl_3$ après l'addition de la mélamine.

Le papier est dirigé dans les différentes presses, il a une activité assez faible (0,8 mR/h au contact) et il peut être manipulé à la main à condition d'utiliser des gants pour éviter la contamination toujours très grande avec le papier.

Il faut environ 10 minutes pour réaliser le papier, la machine étant préalablement réglée

La majeure partie des 150 litres d'eau sera rejetée à l'égoût et comme cette eau entraîne environ 20 % de la colle il faut étudier le problème du rejet d'effluents.

REJET d'EFFLUENTS -

Il faut prévoir une évacuation conforme aux normes de sécurité. La concentration maximale autorisée pour une population non surveillée est dix fois plus faible que pour le personnel du C.E.A. - C'est-à-dire que nous pouvons rejeter 200 μ C/m^3 de Sodium 24.

Notre concentration est de 1.500 µC, dans 150 litres soit 10.000 µ C/m^3 ; il faut donc diluer 50 fois les eaux résiduelles, ce qui est fait en ajoutant un débit de 60 l/mn d'eau inactive. Comme seulement 20 % d'activité est rejetée, il suffit d'ajouter 1,5 m^3, en fait nous mettons plus de 3 m^3.

La dilution pouvait se faire dans les bacs de décantation d'une contenance de plusieurs milliers de m^3, mais vu la température extérieure bien en dessous de 0°C, il pouvait se produire un bouchon de glace dans les canalisations ou dans les vannes. Cette mesure de dilution fut prise pour éviter tous risques.

A l'aide de radiamètres, nous avons vérifié la radioactivité des eaux usées; 2 h après la manipulation et en tous les endrcits examinés les appareils n'ont rien décelé.

Pour le personnel, les mêmes précautions sont prises et un stylo dosimètre placé au poignet enregistre 10 mR pour la durée totale de la manipulation.

AUTORADIOGRAPHIES -

Nous procédons comme précédemment pour la gélatine. Le contact est réalisé 3,5 h après défournement et le développement a lieu au bout de 3 et 9 périodes soit 45 h et 135 h.

Nous profitons de cette expérience pour vérifier, à titre personnel, l'utilisation des écrans renforçateurs, comme cela a été expliqué dans le paragraphe "CHOIX des TRACEURS", et nous n'obtenons, en accord avec la théorie, aucun noircissement.

Le film DEFINIX développé après 135 h est utilisable, son noircissement est un peu faible mais à l'aide d'un photomètre enregistreur on trace des relevés microphotométriques significatifs.

CALCUL de l'ACTIVITE SPECIFIQUE du PAPIER

1,6 mC au défournement correspond à 1,3 mR

3,5 h après

Il y a une perte de 20 % de la colle, il reste

1,3 x 0,8 $\simeq$ 1 mR pour 2 Kg de pâte.

Le papier faisant 200 g/m^2 nous avons $\frac{2.000}{200}$ = 10 m^2

Sur 9 périodes le nombre de particules émises est peu différent de la quantité totale,

soit : $\frac{A \times T}{0,693} = \frac{1 \times 15 \times 3.600}{0,693} \times 3,7.\ 10^{17}$

Comme il y a émission de 1 beta pour 3 particules

Nombre de beta émis : $\frac{1 \times 15 \times 3.600 \times 3,7.10^{7}}{0,693 \times 3} \simeq 9,6.\ 10^{11}$

Cela pour 10 m^2

donc il y a : $9,6.10^{11} \times 10^{-5} = 9,6.10^{6}$ beta/cm^2

soit environ 10^7 beta / cm^2

Le noircissement est plus faible que dans le cas de la gélatine où l'on a pourtant le même nombre de particules. Il semble que la quantité de colle entraînée soit supérieure à 20 %

B) TRACEURS A POSTERIORI -

Nous avons vu au chapitre de "L'Activation du PAPIER FINI" que le carbonate est un très bon traceur à posteriori, cela nous offre la possibilité de vérifier la validité des traceurs tels que le Dysprosium et le Samarium.

Nous dissolvons 200 mg de $Sm_2 O_3$ dans une solution nitrigne à 60°C et nous ajoutons cette solution dans le cuvier car une addition dans la colle provoquerait une floculation prématurée à cause de NO_3H.

IRRADIATION -

Il faut irradier le Samarium sans que le Sodium perturbe l'analyse.

L'irradiation a lieu aux "canaux de chimiste" à $E.L_2$, car, eux seul permettent l'irradiation de surface importante (100 cm^2)

Durée : 100 h

Flux : 2,4 10^{10} $n/cm^2.s$

Il faut laisser décroître 60 h pour permettre au ^{24} Na de disparaitre.

DOSAGE DE Sm -

Nous irradions 8 cm^2 de papier avec une solution témoin contenant 0,1 mg de Sm et nous utilisons un spectrographe gamma multicanaux.

L'échantillon étant de petites dimensions nous irradions au pneumatique de $E.L_3$ ce qui nous permet en 20 minutes d'avoir la même activité qu'en plusieurs dizaines d'heures à $E.L_2$. L'analyse s'effectue sur les pics caractéristiques du Samarium, nous pouvons procéder à l'analyse peu de temps après le défournement.

	HAUTEUR des PICS	DUREE du STOCKAGE	SENSIBILITE de l'Appareil Nbre de Coups Max.
Témoin	20,3 cm	3 mn	65.536
Papier	11 cm	28 mn	16.382

Pour 8 cm^2, il y a :

$$\frac{0,1 \times 11}{20,3} \times \frac{3}{28} \times \frac{16.382}{65.536} = 1,45.10^{-3} mg$$

soit : $\frac{1,45.10^{-3} \times 10^4}{8} = 1,8 \ mg/m^2$

-=-=-=-=-

V - ANALYSE DES RESULTATS

Au cours des différentes expériences, cinq traceurs furent utilisés :

- un traceur intrinsèque,
- un traceur du deuxième ordre,
- trois traceurs "à posteriori".

Nous connaissons grâce à eux la localisation de la colle V.M.S. 12 et de la gélatine, et surtout par utilisation de plusieurs types de traceurs nous trouvons une méthode d'analyse fine et de mise en oeuvre relativement simple.

1°) LOCALISATION DE LA GELATINE

Nous obtenons les mêmes résultats avec le traceur du deuxième ordre (Sodium 24) et le traceur à posteriori (Dysprosium).

Il y a une certaine hétérogénéité, qui est la même que celle de la pâte à papier.

En comparant les deux autoradiographies au papier vu par transparence, nous obtenons à peu près les mêmes images, il y a donc un rapport entre les imperfections du papier et la répartition de la gélatine, ce qui laisse supposer que la répartition de la gélatine est massique et non pas seulement en surface. Nous vérifions ceci avec le Dysprosium, il n'y a pas de différence entre la partie intacte du papier et celle dont nous avons enlevé la couche superficielle.

Nous reproduisons dans les pages suivantes les différentes autoradiographies et relevés microphotométriques.

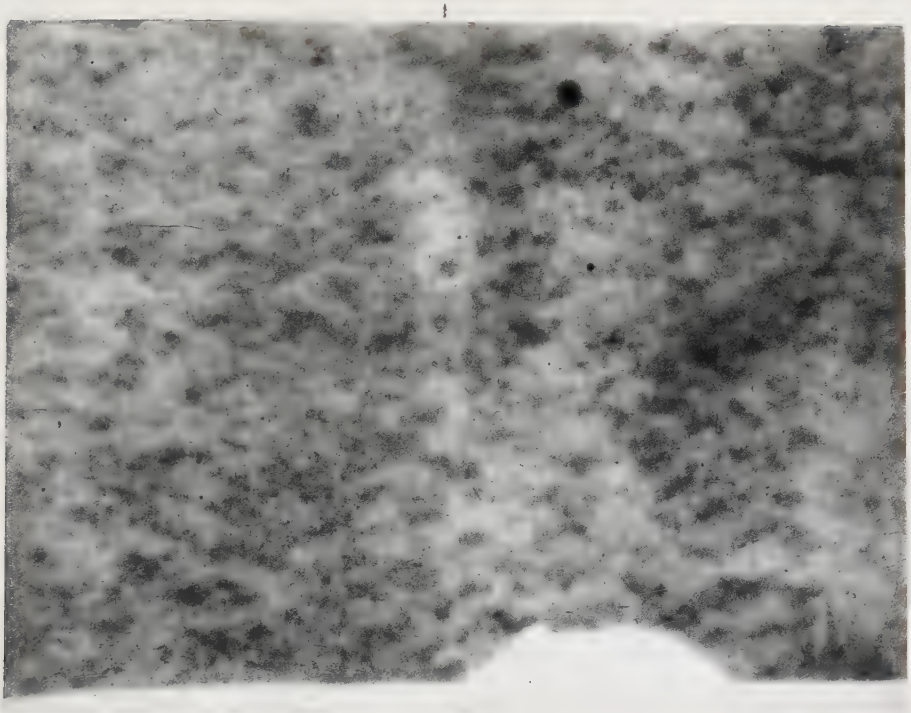
CONCLUSION -

La répartition de la gélatine est hétérogène de la même façon que celle de la pâte à papier, ce n'est pas un surfaçage mais une pénétration dans toute la masse.

Nous obtenons les mêmes résultats avec un traceur à postériori qu'avec un traceur du deuxième ordre.

Le Dysprosium offre le double avantage d'éviter la manipulation de produits radioactifs et de donner une autoradiographie 3 heures après la fabrication (au lieu de plusieurs dizaines d'heures pour le Sodium). Il suffit de très petites quantités de Dysprosium (3 mg au m^2) dont le prix que nécessite une telle opération est limité. L'opération d'encollage de la gélatine contenant le Dysprosium peut être faite par une personne totalement ignorante de la manipulation de radioélément.

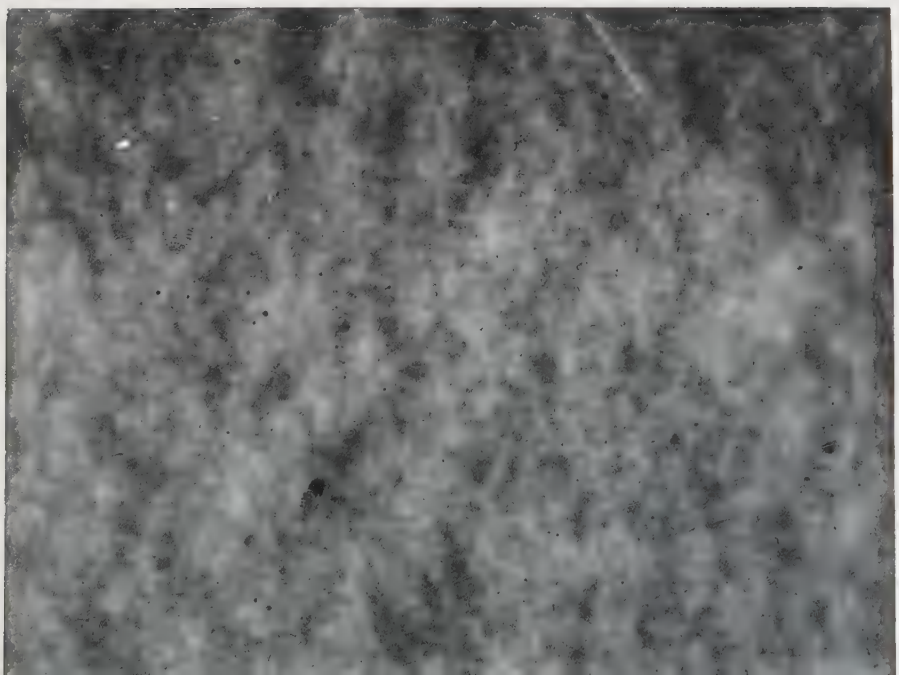
GELATINE + DYSPROSIUM

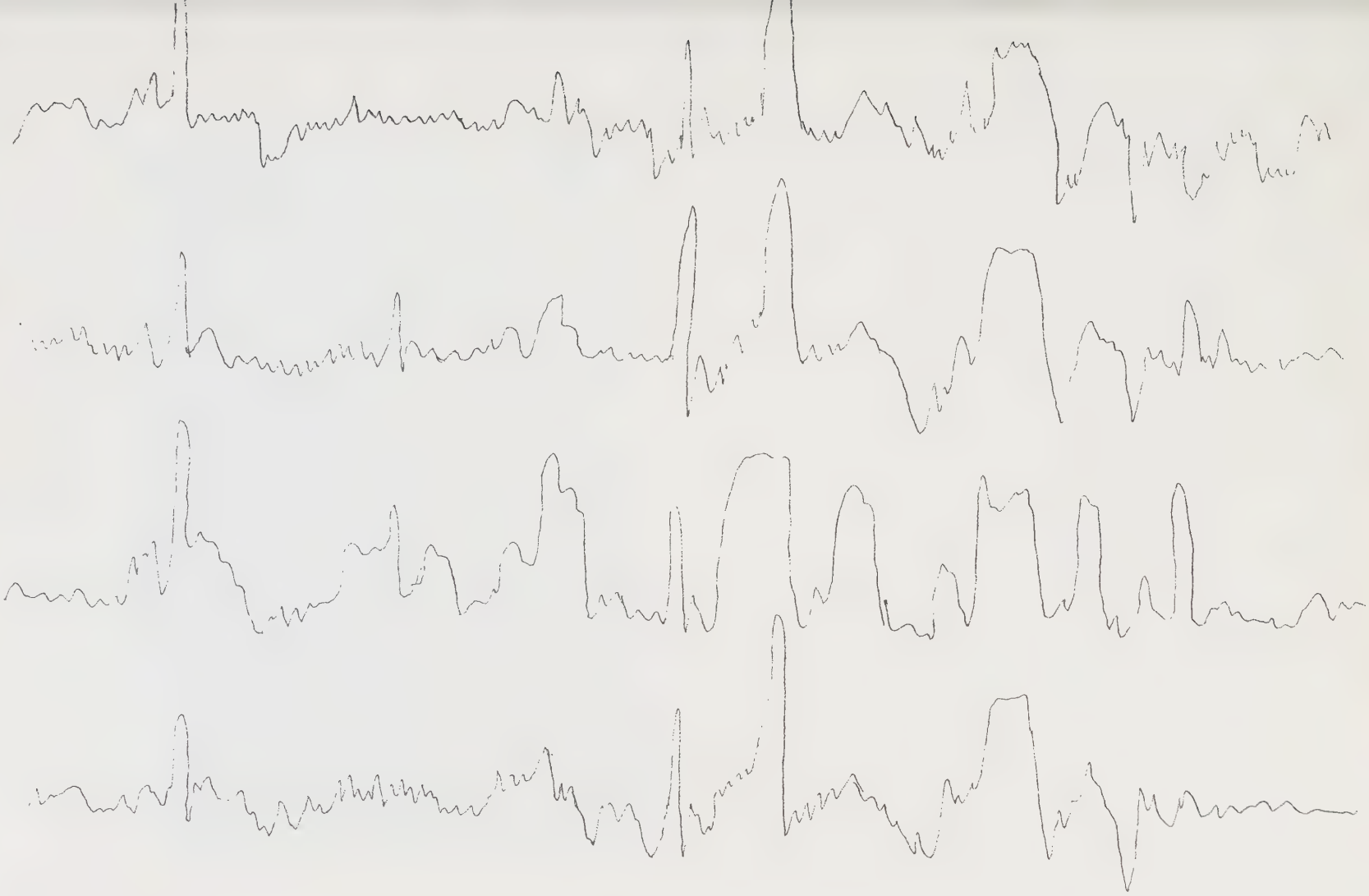


Papier intact

papier sans la 1ère couche

GELATINE + SODIUM 24





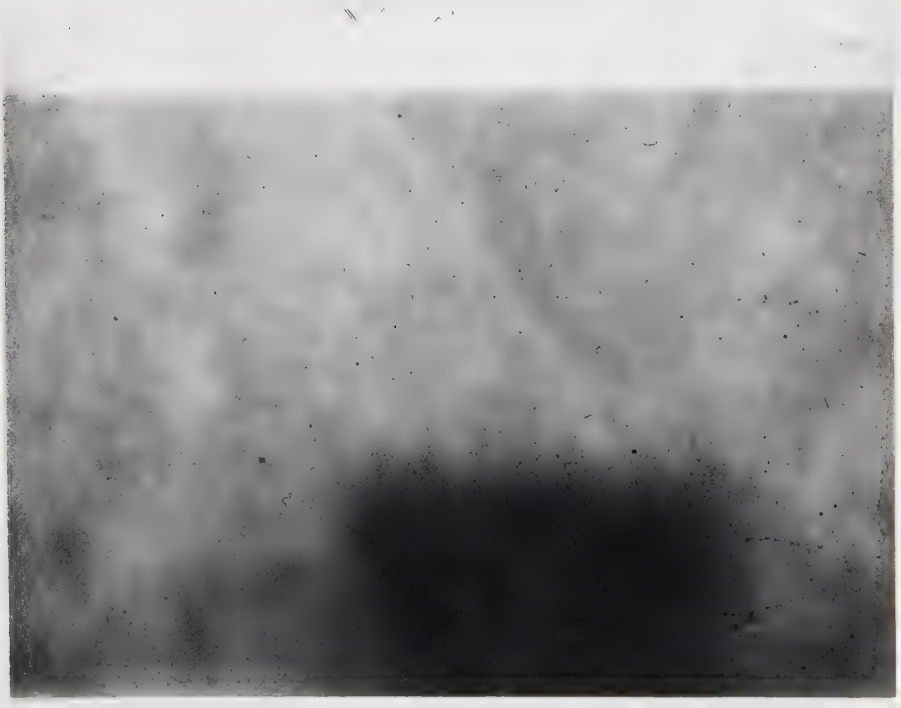
RELEVE MICROPHOTOMETRIQUE de l'AUTORADIOGRAPHIE

de la GELATINE

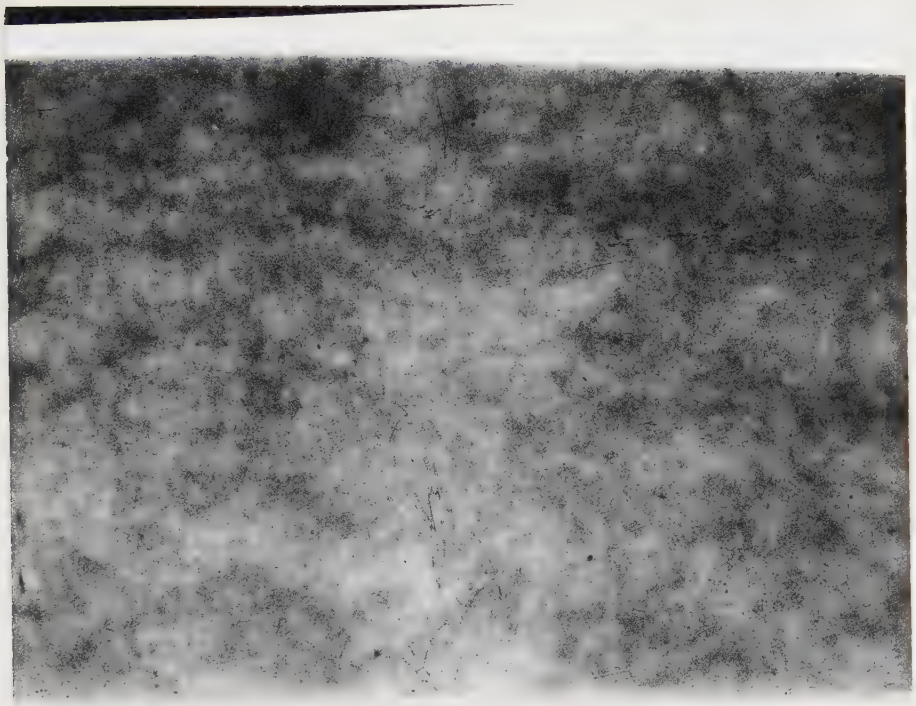
2°) LOCALISATION DE LA COLLE V.M.S. 12

Nous obtenons les mêmes résultats avec le traceur du deuxième ordre (^{24}Na) et les deux traceurs à postériori : le Sodium 24 et le Samarium 153.

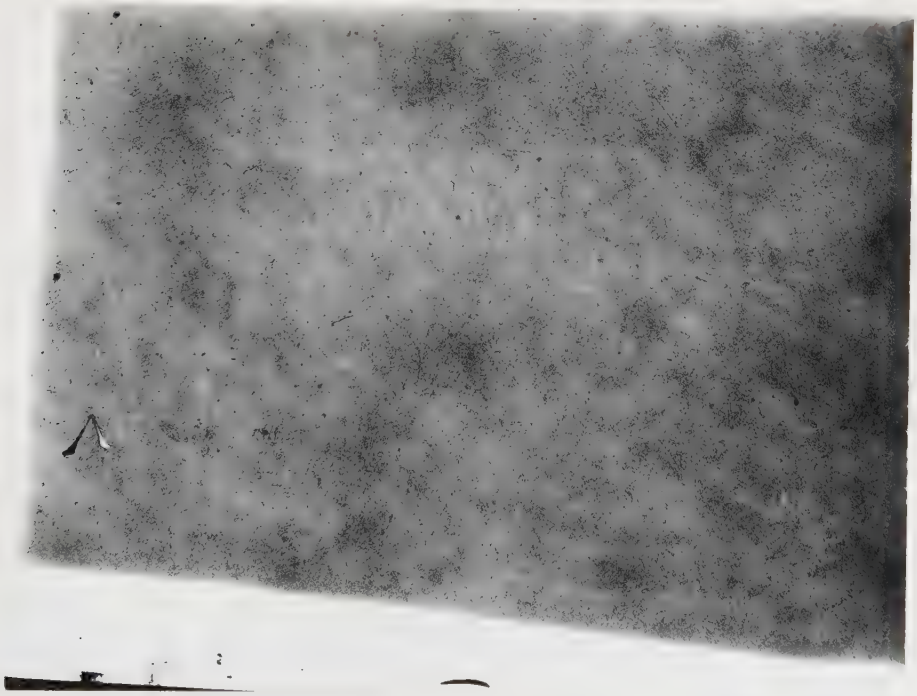
La répartition de la colle est homogène dans les trois cas, et nous voyons la différence avec le cas précédent de la gélatine.



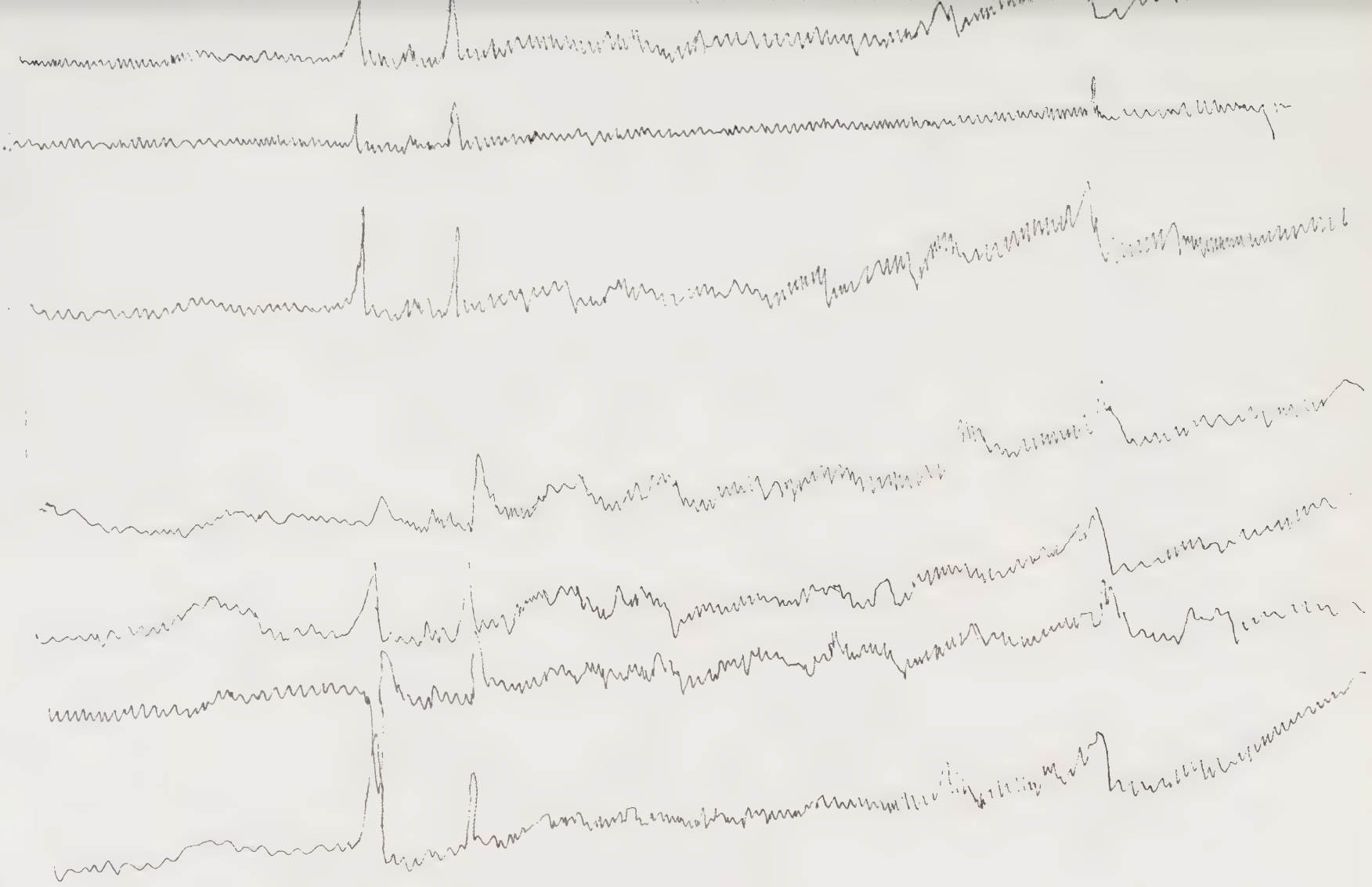
AUTORADIOGRAPHIE OBTENUE AVEC
le TRACEUR du DEUXIEME ORDRE



TRACEUR : Sm "à posteriori"



TRACEUR : Na "à posteriori"



RELEVE MICROPHOTOMETRIQUE de l'AUTORADIOGRAPHIE de la COLLE

Les trois traceurs sont parfaitement valables, notre préférence va au Sodium utilisé comme traceur à posteriori, il ne nécessite aucune fabrication spéciale et nous obtenons une bonne autoradiographie par simple irradiation en réacteur nucléaire du papier fini.

CONCLUSIONS -

Nous avons vérifié que les traceurs à postériori sont parfaitement valables ; ce qui était prévisible étant donné le caractère simple des réactions mises en jeu durant la fabrication Nous pouvons donc, avec plusieurs de ceux-ci, marquer les différentes colles d'un même papier et obtenir plusieurs autoradiographies, chacune représentant la localisation d'une colle.

Nous pouvons, par exemple, marquer un corps au Dysprosium, un autre au Samarium et, la colle V.M.S. étant naturellement marquée au Sodium nous aurons sans difficulté trois autoradiographies.

Si nous désirons suivre un nombre plus élevé d'adjuvants, en combinant les techniques des traceurs du premier et du deuxième ordre à celles des traceurs à postériori, nous obtiendrons une série d'autoradiographies analysant de façon sélective la répartition des différentes substances marquées.

o
o o

B I B L I O G R A P H I E

- ARMSTRONG A. Arthur

Applications of Radioisotopes and activation analysis to textile material and Processes

U.S. Atomic Energy Commission

- BOYD G.A.

Autoradiography in Biology and Medicine 1955

- BRIERE M.

Manuel pratique d'utilisation des compteurs à scintillation

C.E.A. - Janvier 1960

- BROWNELL - LLYOD D.E.

Radiations Uses in Industry and Sciences

University of Michigan 1961

- BULLETIN d'INFORMATIONS SCIENTIFIQUES & TECHNIQUES

Mars 1959 - n° 27

Mai 1961 - n° 51

- COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE

Radioéléments Artificiels - Avril 1962

Notice "MELUSINE"

- CORYELL and SUGARMAN

Book 1

- COURTOIS G. - LEMONNIER

Notes Gammagraphiques

C.E.A. DR/AR / 62-15

- COURTOIS G.

Quelques aspects théoriques de la gammagraphie

C.E.A. S.A.R. / 58-461

- COURTOIS G.

Les Applications Industrielles des Radioéléments

CENTRE de PHYSIQUE NUCLEAIRE de la
FACULTE des SCIENCES de TOULOUSE

- ERWALL - LARS G. et LJUNGGREN KNUT

Utilisation des Radioéléments dans l'Industrie de la Cellulose.

Isotopes techniques Laboratory STOCKHOLM

- ESCOURROU R.

La Fabrication du papier

Armand COLIN - n° 326

- FOUARGE J.

L'analyse chimique par activation aux neutrons

Industrie Chimique Belge

XXIV n° 2 - p. 143

- GLAFKIDES

Chimie Photographique

- GODAR S.

Note C.E.A. 352 - 1961
345 - 1962

- HOURS R.

Les applications Industrielles des traceurs radioactifs

C.E.A. DR/AR / 63 - 1

- HUDSON E. - JAMES H. - PUTMAN J.L

The retention by paper ofSulphur present an anionic Urea formaldehyde Resin and the migration of the resin with Radioactive sulphur

T.A.P.P.I. 38 - 166 A n° 9
1955

- INTERTECHNIQUE

Notice du Sélecteur 100 canaux

S.A.E. 330

- JOURNAL OF TEXTILE INSTITUTE

An investigation of inactive tracer technique for measurement of amount and uniformity of Wax on knitting yarn

Vol. 53 - n° 7 - July 1962

- JUNOD E.

L'analyse par activation

C.E.A. S.A.R/G / 61 - 35

- KUHN W.

Radiométrische Bestimmung des Paraffinauftrages auf Gernen

WIRKEREI UND STICKEREI TECHNIK
December 1962 - n° 12

- LAVERLOCHERE J.

Sur l'analyse par activation

S.A.R. - G / 60 - 5

- LEBLANC D.

Détecteurs de particules

- LEYMONIE C.

Les traceurs radioactifs en métallurgie physique

- LE GALLIC - LEGRAND - GRINBERG

Méthode rapide d'identification des émetteurs beta et de dosage d'impuretés Radioactives beta

J.A.R.I. 1961 - Vol. 11

- ROCHAS - GAVET

Application de la Rédioactivité dans la recherche et l'Industrie Textile

Institut Textile de FRANCE

Septembre 1962

- S A N D E R S

Sources de neutrons pour expérimentation

ATOMICS 1954 5 78

- SANKEY C.A - MASSON S.G - ALLEN G.A

Application of radioactive tracers to measurement of fibre flow and distribution

Paper Magazine of CANADA

52 - n° 3 - 1951

- SHARPE - TAYLOR

Mesure et détection des Rayonnements nucléaires

- SHEPPARD C.W

Basic principles of the tracer method.

- TAYLOR K.J - G.T. ROGERS

The décomposition of certain inorganic, organic and aqueous targets on pile radiation.

BERKSHIRE 1962

- WANWE - VAN O.

Application de traceurs radioactifs à l'étude des problèmes de mélange

Rapport C.E.A. DR/S.A.R. -

6 / 62 - 104

- WHITEHOUSE and PUTMAN

Radioactive . Isotopes

o

o o

DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté :

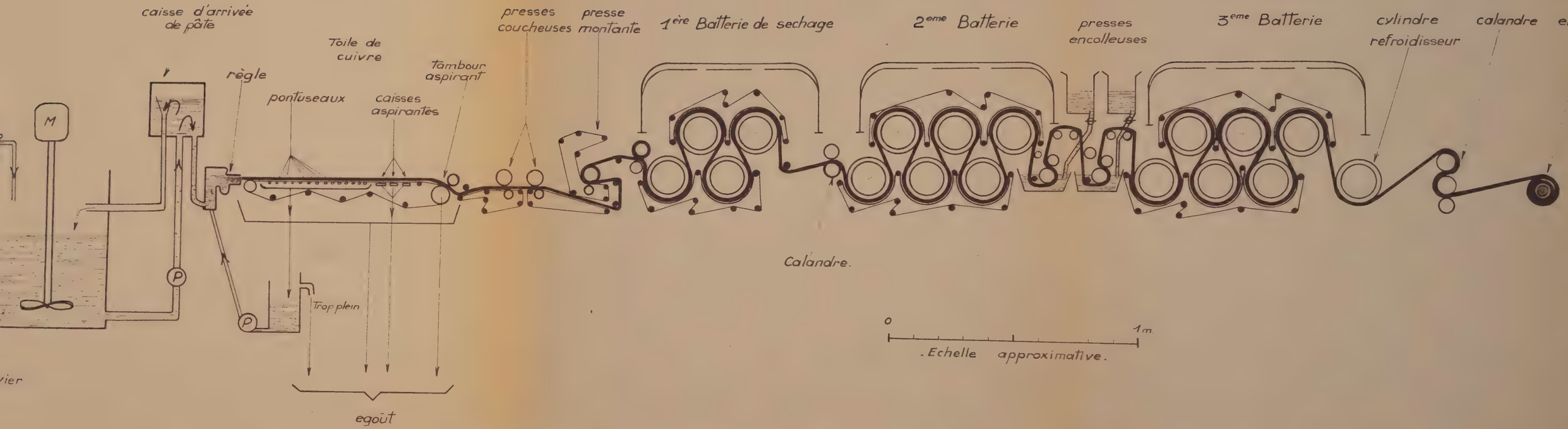
LES CHAMBRES A BULLES A LIQUIDES LOURDS

VU et APPROUVE
CLERMONT-FERRAND, le 24 Avril 1963
Le Doyen :

P.REMY

Vu et permis d'imprimer
Le Recteur de l'Académie de CLERMONT-FERRAND

E. LAPALUS



MACHINE A PAPIER DE LABORATOIRE KAEMMERER